



HAL
open science

Étude expérimentale par impact électronique de l'ionisation simple et double d'atomes et de petites molécules

Adnan Naja

► **To cite this version:**

Adnan Naja. Étude expérimentale par impact électronique de l'ionisation simple et double d'atomes et de petites molécules. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2008. Français. NNT: . tel-00384029

HAL Id: tel-00384029

<https://theses.hal.science/tel-00384029>

Submitted on 14 May 2009

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

N° d'ordre : 9241

THÈSE

Présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ PARIS-SUD 11

Spécialité : Physique

Par

Adnan NAJA

Sujet :

Étude expérimentale par impact électronique de l'ionisation simple et double d'atomes et de petites molécules

soutenue le 21 novembre 2008 devant la commission d'examen composée de :

Dr. Lorenzo Avaldi (CNR-Rome)	Rapporteur
Dr. Amine Cassimi (GANIL-Caen)	Rapporteur
Pr. Boghos Joulakian (Université de Metz)	Examineur
Pr. Jérôme Leygnier (Université Paris-Sud XI, Orsay)	Examineur
Pr. Khaled Hussein (Université Libanaise, Tripoli)	Co-directeur de thèse
Pr. Azzedine Lahmam-Bennani (Université Paris-Sud XI, Orsay)	Directeur de thèse

Thèse préparée au sein du **Laboratoire des Collisions Atomiques et Moléculaires (UMR 8625)**

N° d'ordre : 9241

THÈSE

Présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ PARIS-SUD 11

Spécialité : Physique

Par

Adnan NAJA

Sujet :

**Étude expérimentale par impact électronique de l'ionisation
simple et double d'atomes et de petites molécules**

soutenue le 21 novembre 2008 devant la commission d'examen composée de :

Dr. Lorenzo Avaldi (CNR-Rome)	Rapporteur
Dr. Amine Cassimi (GANIL-Caen)	Rapporteur
Pr. Boghos Joulakian (Université de Metz)	Examineur
Pr. Jérôme Leygnier (Université Paris-Sud XI, Orsay)	Examineur
Pr. Khaled Hussein (Université Libanaise, Tripoli)	Co-directeur de thèse
Pr. Azzedine Lahmam-Bennani (Université Paris-Sud XI, Orsay)	Directeur de thèse

Thèse préparée au sein du **Laboratoire des Collisions Atomiques et Moléculaires (UMR 8625)**

Résumé

Les expériences (e,2e) et (e,3e) constituent un outil privilégié pour étudier la dynamique de la simple et la double ionisation de petits systèmes par impact électronique, et plus généralement pour contribuer à la compréhension du problème de l'interaction à N-corps.

Dans cette thèse, nous avons réalisé de telles expériences dans un domaine cinématique resté quasi-inexploré, où le transfert de moment à l'ion résiduel est important, de sorte que l'ion joue un rôle majeur dans le processus d'interaction projectile - cible. Les résultats expérimentaux sont comparés à ceux des modèles théoriques les plus sophistiqués.

Nous avons mesuré les sections efficaces triplement différentielles (SETD) de simple ionisation de He et H₂, ce qui a permis de mettre en évidence la présence pour la molécule H₂ d'effets d'interférences quantiques de type fentes d'Young.

Nous discutons ensuite des mesures de SETD de Ne et N₂, ionisés sur une orbitale externe ou interne. Nos résultats ont permis de montrer l'importance des interactions post-collisionnelles et du rôle joué par le noyau.

Enfin, nous avons étudié la compétition entre différents processus d'ionisation de l'argon : d'une part, simple ionisation (e,2e) en couche interne 2p, et d'autre part, double ionisation (e,3e) directe (3p⁻²) ou indirecte *via* le processus Auger impliquant la couche 2p. Dans les conditions cinématiques choisies, ces processus peuvent entrer en compétition ou interférer entre eux. L'accent est mis sur leur contribution respective, en particulier pour l'effet Auger. Diverses structures observées dans la distribution angulaire des sections efficaces (e,3e) sont attribuées à différents mécanismes d'ionisation.

MOTS-CLES

Technique de coïncidences, Analyseur toroïdal, Multi-analyse et multi-détection, Interférences quantiques, Section efficace différentielle, Corrélation électronique

Abstract

(e,2e) and (e,3e) experiments constitute a privileged tool for studying the dynamics of electron impact single and double ionization of small systems, and more generally for contributing to the understanding of the N-body interaction problem.

In this work, we have performed such experiments in an unexplored kinematical regime where the momentum transferred to the residual ion is large, so that the ion plays a major role in the interaction process. The experimental results are compared to those of the most sophisticated theoretical models.

We have measured the triply differential cross sections (TDCS) for single ionization of He and H₂. Their comparison allowed showing the presence for the H₂ molecule of Young type quantal interference effects.

We then discuss TDCS measurements for Ne and N₂ ionized either on an outer or an inner orbital. The results show the importance of the post collisional interactions and the role played by the nucleus.

Finally, we study the competition between different ionization processes of argon : (e,2e) single ionization of the inner 2p shell on the one hand, and a direct (3p⁻²) (e,3e) double ionization or an indirect one via the Auger process implying the 2p shell, on the other hand. Under the chosen kinematics, these processes may compete or interfere with each other. The emphasis is put on their respective contribution, particularly for the Auger effect. Several structures observed in the angular distribution of the (e,3e) cross section are attributed to different ionization mechanisms.

KEY-WORDS

Coincidence technique, Toroidal analyser, Multi-analysis and multi-detection, Quantum interferences, Differential cross section, Electronic correlation

Remerciements

Mes premiers hommages vont à celui pour lequel cette page est bien loin de suffire à exprimer toute ma reconnaissance. Azzedine, je te remercie pour m'avoir accueilli il y a déjà trois ans, pour m'avoir accordé ta confiance et patiemment écouté surtout lorsque j'ai commencé à avancer dans le long chemin de la recherche avec des pas incertains et hésitants. Je te suis reconnaissant de m'avoir transmis ton goût de la recherche, ta passion de l'enseignement. Bien plus qu'un directeur de thèse, tu as dépassé le rôle d'un tuteur pour être un ami sincère. Physicien et pédagogue exemplaire, j'ai beaucoup appris à ton contact, tout en prenant un très grand plaisir à être ton thésard. Je te témoigne donc ici ma profonde gratitude.

Mes vifs remerciements sont adressés aussi à mon codirecteur de thèse Mr Khaled Hussein pour la liberté qu'il m'a accordé et la confiance qu'il a eu en moi. Je tiens à lui dire que j'ai tellement appris de lui, tant sur le plan 'relationnel' que sur le plan scientifique. Son calme à toute épreuve, sa juste appréciation des événements et ses conseils précieux ont su m'apaiser dans les périodes de doutes. Je lui suis reconnaissant de m'avoir, en quelque sorte, 'mis le pied à l'étrier'.

Je tiens ensuite à exprimer ma profonde reconnaissance à Magda pour m'avoir assuré les bonnes conditions pour le meilleur déroulement de la thèse. Je te remercie, Magda, pour ton encouragement et tes très hautes qualités humaines qui m'ont été vraiment utiles et apaisants.

J'adresse également mes remerciements à Mr Lorenzo Avaldi et Mr Amine Cassimi, d'avoir consacré une partie de leur temps et de leurs efforts pour 'rapporter' sur mon travail. Je tiens à remercier également Mr Bedros Joulakian d'avoir accepté de faire partie de mon jury de thèse en tant qu'examineur. Merci également à Mr Jérôme Leygnier qui a accepté d'être examineur et président du jury.

Cette thèse fut une expérience très enrichissante aussi bien sur le plan professionnel que personnel. Elle m'a permis en particulier de faire la connaissance de plusieurs amis avec qui j'ai passé des moments très agréables. A vous toutes et tous, ainsi qu'à mes anciens amis, j'adresse les expressions de mes vifs remerciements et de ma gratitude pour votre encouragement et votre support moral en vous souhaitant beaucoup de succès : Xueguang,

Férid, Damien, Marie, Caroline, Pierre, Erika, Khaled, Taha, Charbel, Achraf, Salem, Issam, Anas, Samy, Houmam, Nimet... J'adresse également mes remerciements à ma collègue Nouha du laboratoire LIXAM, ainsi qu'à son mari Khaled, pour les bons moments passés ensemble. Enfin, je ne peux pas oublier Hicham avec qui j'ai passé ces années de thèse en confrontant nos idées sur la science et le monde en général. Je n'oublierai jamais les belles soirées qu'on a passées ensemble au laboratoire,... J'apprécierai pour toujours son inestimable et incomparable amitié.

Mes remerciements s'adressent également aux membres du laboratoire LCAM dans lequel j'ai vécu une expérience très enrichissante grâce à sa diversité culturelle et à l'ambiance de convivialité et de respect qui y règne. Je remercie Victor Sidis, directeur du laboratoire, et tout le personnel administratif, Bernadette, Catherine et Mireille pour leur gentillesse et serviabilité. Je suis reconnaissant aussi envers Angel Abadia et Michel Lecas pour leur professionnalisme et leur gentillesse. Sans eux, le dispositif expérimental ne serait pas ce qu'il est.

Mes remerciements, ma gratitude, ma reconnaissance, tous associés et c'est encore peu pour mes chers parents Salem et Hanan, à qui je dois tout après Dieu, pour les sacrifices et le dévouement qu'ils ont fait pour moi ainsi que pour mes sœurs et frères pour nous fournir un bon niveau d'instruction et d'éducation. Je leur suis infiniment reconnaissant pour leur amour, leur soutien et leur encouragement à être le meilleur. Qu'ils trouvent aussi le fruit de leur travail !!

Je tiens à exprimer également mes remerciements et gratitude à mes chers sœurs et frères, Hana et son mari Fadi, Sana et son mari Nazih, Dania et son mari Hayssam pour leur encouragement et support moral en leur souhaitant plein de succès dans leur vie. Un remerciement particulier est dédié à mon frère Ziad pour m'avoir vivement encouragé durant ma thèse et pour m'avoir souvent gâté par ses petites attentions particulières. Grâce à son soutien salvateur dans certains moments, il m'a fait oublier que le Liban est si loin !!

Une pensée émue à mon grand père Adnan. Il a tellement rêvé de me voir un 'docteur' mais il nous a quitté durant la thèse. J'aimerais pouvoir lui dire que sa présence me manque plus que jamais : « tu n'es plus de ce monde, mais je vois toujours ton beau sourire et tes yeux si doux ... A toi, je dédie ce mémoire! »

Mes remerciements vont également à l'Agence Universitaire de la Francophonie (AUF) qui a financé mes études tout au long de mon séjour en France.

Je réserve ma dernière mais '**spéciale**' mention à ma femme Farah, qui était et restera pour toujours '*mon rayon de soleil*' et '*ma source d'espoir*' !!!

Table des Matières

Introduction générale	5
Chapitre 1	9
Eléments théoriques	9
1.1 Introduction	9
1.2 Ionisation : terminologie et notations	10
1.3 Sections Efficaces Différentielles d'ionisation	11
1.3.1 Section Efficace Simplement Différentielle	11
1.3.2 Section Efficace Doublement Différentielle	12
1.3.3 Section Efficace Triplement Différentielle	12
1.4 Collisions (e,2e)	13
a- Etudes de la dynamique du système	13
b- Etudes de la structure de la cible	14
c- Cinématique de la collision	14
1.5 Théorie de la diffusion	16
a- Description du phénomène	16
b- La section efficace	17
c- Matrice de transition T	18
d- Equation de Lippmann-Schwinger	19
e- Développement de Born	19
f- Première approximation de Born (FBA)	20
1.6 Modèles théoriques	21
a- Modèle « Brauner, Briggs et Klar » (BBK)	21
b- Modèle « Approximation de Born aux ondes distordues » (DWBA)	22
c- Modèle CCC	23
1.7 Application aux problèmes moléculaires	24
a- Modèle FBA-TCC	24
b- Modèle M3DW-OAMO	25
1.8 Bibliographie	27

Chapitre 2	29
Dispositif expérimental	29
2.1 Introduction	29
2.2 Description du dispositif expérimental	30
2.2.1 Enceinte à vide	30
2.2.2 Sources	31
a- Source de gaz.....	32
b- Source d'électrons	32
2.3 Analyseurs toroïdaux	34
2.3.1 Double analyseur toroïdal	34
a- Description	34
b- Propriétés de focalisation	36
c- Paramètres de focalisation.....	37
d- Dispersion énergétique et angulaire	38
e- Résolution en énergie	39
2.3.2 Détecteur sensible en position.....	40
a- Galettes à micro-canaux (MCP)	40
b- Anode résistive et signaux de position	41
c- Signal temps	42
d- Montage du détecteur	42
2.3.3 Nouvel analyseur toroïdal pour les électrons diffusés	43
a- Résolution énergétique	44
b- Résolution angulaire.....	46
2.4 Principe des mesures en coïncidence	46
2.5 Système d'acquisition	47
2.6 Technique de mesure	49
a- Spectre de coïncidence (e,2e).....	49
b- Spectre de coïncidence (e,3e)	52
2.7 Bibliographie	

Chapitre 3	57
Mesures (e,2e) sur les cibles bi-électroniques He et H₂ : effets d'interférences dans H₂	57
3.1 Introduction	57
3.2 Facteur d'interférence	60
3.3 Conditions expérimentales	62
3.4 Résultats et discussions	63
3.4.1 Distributions angulaires des sections efficaces	63
3.4.2 Effets d'interférences.....	69
3.5 Conclusion	71
3.6 Bibliographie	72
Chapitre 4	73
Ionisation de cibles multiélectroniques : mesures (e,2e) sur le néon et l'azote moléculaire	73
4.1 Introduction	73
Section 4.A : Mesures (e,2e) sur Ne	74
4. A.1 Expérience	75
4. A.2 Résultats et discussions	77
a- Comparaison expérience (Orsay) - expérience (Adelaïde).....	79
b- Comparaison expériences - théories	82
Section 4.B : Mesures (e,2e) sur N₂	85
4. B.1 Motivation	85
4. B.2 Expérience	85
4. B.3 Résultats et discussions	86
4.2 Conclusion	90
4.3 Bibliographie	92
Chapitre 5	93
Expériences (e,2e), (e,3-1e) et (e,3e) sur l'atome d'Argon : effet Auger	93
5.1 Introduction	93

5.2	Processus Auger	95
5.3	Compétition des processus	97
5.4	Expériences (e,2e) - (e,3-1e)	99
	5.4.1 Description	99
	5.4.2 Résultats et discussions	100
5.5	Expérience (e,3e)	105
	5.5.1 Description	105
	5.5.2 Résultats et discussion.....	106
5.6	Conclusion	111
5.7	Bibliographie	112
	 Conclusion générale	 113

Introduction générale

L'étude de l'ionisation simple ou multiple des atomes ou des molécules par impact de particules chargées, et plus particulièrement par impact électronique, représente un des domaines les plus importants de la physique des collisions. L'analyse des informations qu'apportent ces études joue un rôle essentiel aussi bien pour la compréhension de la structure de la matière que de la dynamique de la collision et présente un intérêt tant fondamental que pratique pour la compréhension de nombreux phénomènes naturels dans plusieurs domaines de la physique, tels que la biophysique (dépôt d'énergie consécutif à l'irradiation de tissus vivants), la physique des plasmas (processus de transfert d'énergie au sein de plasmas chauds) et l'astrophysique (rôle essentiel des mécanismes élémentaires d'interaction – ionisation, excitation, capture – qui interviennent lors de la formation d'objets cosmologiques).

Dans ce mémoire, nous étudions par des expériences dites (e,2e) et (e,3e), la *dynamique* de l'ionisation d'atomes et de petites molécules. L'acronyme (e,2e) [ou (e,3e)] réfère spécifiquement à une expérience dans laquelle un électron projectile provoque une ionisation simple [ou double] en arrachant un [ou deux] électrons à la cible. Les deux [ou trois] électrons de l'état final sont analysés en énergie et en direction et sont détectés en coïncidence pour garantir qu'ils proviennent du même événement ionisant. La grandeur physique ainsi mesurée est la section efficace triplement [ou quintuplement] différentielle, qui contient l'information la plus complète et la plus détaillée sur le processus d'ionisation.

Trois paramètres jouent un rôle essentiel dans le processus de diffusion : l'énergie incidente (E_0), la perte d'énergie (ΔE) du projectile et la grandeur K du transfert de quantité de mouvement à la cible (\vec{K} est défini par la différence entre les quantités de mouvement initiale et finale du projectile, $\vec{K} = \vec{k}_0 - \vec{k}_a$). Schématiquement, on distingue alors trois régimes de diffusion, suivant la cinématique considérée [Ehrhardt *et al* 1986], [Lahmam-Bennani, 1991].

- Le cas limite dit binaire, caractérisé par une énergie incidente E_0 élevée (plus exactement une vitesse de l'électron incident élevée par rapport à celle des électrons de la cible) et un grand transfert de moment à la cible, transfert qui est totalement absorbé par l'électron [ou la paire d'électrons] de la cible qui va être ionisé[e]. Ce sont les conditions dites de Bethe où la section efficace est reliée proportionnellement à la densité d'impulsion mono- [ou bi-] électronique dans la cible. Ces conditions ont été beaucoup étudiées depuis les années 70 pour le cas de

la simple ionisation (e,2e), donnant naissance à une technique largement répandue appelée Electron Momentum Spectroscopy (EMS), voir par exemple [McCarthy *et al* 1988; Brion 1986].

- Le deuxième cas limite, dit limite optique ou dipolaire, caractérisé également par une énergie incidente E_0 élevée mais un très faible transfert de moment à la cible, K voisin du K_{min} imposé par l'inélasticité du processus d'ionisation. L'électron projectile est alors équivalent à un pseudo-photon, de sorte que le processus de diffusion tend vers un processus de photo ionisation [Inokuti, 1971]. Ceci a été largement prouvé dans la littérature pour le cas de l'ionisation simple (e,2e) [Duguet *et al*, 1987], mais reste encore à établir dans le cas de la double ionisation (e,3e) [Lahmam-Bennani *et al*, 2000].
- Entre ces deux limites 'simples', on trouve le cas 'général' où les énergies et les transferts prennent des valeurs intermédiaires. La structure de la cible est alors supposée connue et les collisions (e,2e) ou (e,3e) ont pour principal but d'étudier la dynamique de l'ionisation, c'est-à-dire de caractériser l'importance relative des différents mécanismes d'interaction impliqués : collision unique ou multiple du projectile avec la cible, polarisation et / ou distorsion des ondes entrante et sortante, rôle des corrélations électroniques tant dans l'état initial de la cible (corrélations dites structurelles) que dans l'état final du système collisionnel (dites dynamiques ou post collisionnelles), etc.

Dans ce travail, nous nous sommes délibérément placés dans ce cas 'général', avec l'objectif suivant:

Dans ce régime cinématique, de nombreuses études théoriques et expérimentales (voir par exemple les articles de revue [Ehrhardt *et al*, 1986] et [Lahmam-Bennani, 1991] pour les réactions (e,2e) et [Berakdar *et al*, 2003] pour les réactions (e,3e)) ont contribué grandement à la compréhension des processus de simple ou double ionisation des couches internes ou externes, des cibles les plus simples aux plus compliquées. L'hélium, et dans une moindre mesure l'hydrogène atomique, sont de loin les cibles qui ont été les plus étudiées. Pour ces atomes simples, le niveau de qualité de l'accord entre théories et expériences est exceptionnel, alors que pour des atomes plus complexes (par exemple les gaz rares plus lourds) subsistent des désaccords substantiels entre théorie et expérience [Catoire *et al*, 2006]. Quant aux cibles moléculaires, elles n'ont été que rarement étudiées en dehors du 'régime EMS', principalement en raison de la difficulté de leur traitement théorique. Par ailleurs, la quasi-

totalité des études existantes n'ont exploré que le régime où le moment de recul de l'ion résiduel est faible, pour la simple raison que le transfert de moment à la cible est alors petit, ce qui correspond à une section efficace plus grande. Nous avons donc choisi dans ce travail de combler en quelque sorte ces lacunes, en nous intéressant d'une part, à des cibles atomiques autres que H et He (et naturellement nous avons considéré Ne et Ar) puis à des petites molécules (H_2 et N_2) ; et d'autre part, en considérant le domaine cinématique resté quasi-inexploré à ce jour où le transfert de moment à l'ion résiduel est important, de sorte que l'ion joue un rôle important dans la formation du lobe dit de recul. Nous verrons tout au long de ce manuscrit comment cette dernière condition s'avère être un test très sévère des différents modèles théoriques couramment utilisés pour décrire le mécanisme d'ionisation.

Cette thèse présente donc une série de mesures des sections efficaces de simple ionisation sur les cibles mono-électroniques He et H_2 et multi-électroniques Ne et N_2 . Elle montre aussi un résultat de simple et de double ionisation de l'Ar. Les sections efficaces multiples différentielles sont mesurées dans une géométrie coplanaire asymétrique, grâce à un dispositif expérimental complexe, caractérisé par une grande efficacité, due à ses propriétés d'imagerie et de collection multi-angles. Le système est basé sur trois analyseurs toroïdaux équipés de détecteurs à galettes sensibles en position. Les distributions angulaires déterminées expérimentalement sont comparées aux prédictions des meilleurs modèles théoriques actuellement disponibles.

La présentation de ce mémoire s'articule de la façon suivante :

Dans le chapitre 1 sont développés quelques aspects théoriques de la collision. Une description succincte des différents modèles théoriques utilisés pour la comparaison avec les mesures est ensuite donnée.

Le dispositif expérimental et la méthode d'analyse des données sont décrits de façon détaillée dans le chapitre 2.

Dans le chapitre 3, les résultats obtenus pour la simple ionisation des cibles mono-électroniques He et H_2 sont présentés et discutés. Ces résultats ont permis en particulier de mettre en évidence un effet purement moléculaire, à savoir la présence d'effets d'interférence de type fentes d'Young, dues aux deux centres diffuseurs dans la molécule H_2 .

L'extension de notre étude à l'ionisation des cibles multiélectroniques Ne et N₂ est présentée et discutée dans le chapitre 4. Pour ces cibles plus complexes, nous avons réalisé des expériences (e,2e) de simple ionisation aussi bien en couche externe qu'en couche interne.

Au chapitre 5, nous avons étudié les processus d'ionisation de l'argon : d'une part, simple ionisation (e,2e) sur sa couche interne 2p, et d'autre part, double ionisation (e,3e) directe (3p⁻²) ou indirecte *via* le processus Auger impliquant la couche 2p. Dans les conditions cinématiques choisies, ces processus peuvent entrer en compétition ou interférer l'un avec l'autre. L'accent est mis sur la contribution respective des différents mécanismes de l'ionisation et en particulier sur l'effet Auger.

Bibliographies

- Ehrhardt H, Jung K, Knoth G and Schlemmer P, Z. Phys. D, **1**, 3 (1986)
Lahmam-Bennani A, J. Phys. B, **24**, 2401 (1991)
McCarthy I E and Weigold E, Rep. Prog. Phys., **51**, 299 (1988)
Brion C E, Int. J. Quant. Chem., **29**, 1397 (1986)
Inokuti M, Rev. Mod. Phys., **43**, 297 (1971)
Duguet A, Chérid M, Lahmam-Bennani A, Franz A and Klar H, J. Phys. B., **20**, 6145 (1987)
Lahmam-Bennani A, Duguet A, Taouil I and Gaboriaud M N in Many Particle Spectroscopy, J Berakdar and J Kirshner, eds., Kluwer Academic/Plenum Pub., pp 245 (2000)
Berakdar J, Lahmam-Bennani A and Dal Cappello C, Phys. Reports, **374**, 91-164 (2003)
Catoire F, Staicu Casagrande E M, Nekkab M, Dal Cappello C, Bartschat K and Lahmam-Bennani A, J. Phys. B., **39**, 2827 (2006)

Chapitre 1

Eléments théoriques

1.1 Introduction

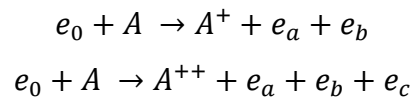
Lors d'une collision électronique, un faisceau d'électrons heurte une cible atomique ou moléculaire. Durant ce processus, deux types de collision peuvent avoir lieu : inélastique ou élastique. Dans le cas élastique, la structure interne de la cible ne change pas durant la collision. Alors que dans le cas inélastique, la particule cible subit un changement dans sa structure interne, soit par excitation électronique, soit par ionisation (et/ou fragmentation dans le cas moléculaire). Le travail décrit dans cette thèse est concerné par le processus de l'ionisation par impact électronique.

L'ionisation par impact électronique est l'arrachement d'un ou plusieurs électrons de la cible suite à la collision entre un électron et celle-ci. On peut distinguer différents types d'ionisation, directe et indirecte (résonnante), simple et multiple, ionisation en couches internes et externes des atomes et des molécules. L'ionisation simple se produit quand l'ion résultant quitte le champ de collision avec une seule charge positive. L'ion peut aussi avoir plusieurs charges positives dues à une ionisation multiple directe, ou indirecte (par exemple via un effet Auger où l'un des deux électrons excités de la cible est émis dans le continuum). L'ionisation directe est l'arrachement d'un ou plusieurs électrons de la cible sous l'effet d'un transfert d'énergie plus ou moins grand à celle-ci. Dans une ionisation indirecte, l'ionisation se produit via un processus résonnant. Un exemple d'effet résonnant est l'autoionisation, où l'électron projectile excite deux des électrons des couches externes de la cible qui passe donc à un état énergétique plus bas en émettant un électron, ce qui l'ionise. Généralement, le processus le plus probable durant une collision est celui de la simple ionisation directe de la cible.

Dans ce chapitre, nous présentons un aperçu des notions élémentaires de la théorie des collisions soulignant les idées principales du contexte dans lequel se situent les enjeux physiques de nos expériences.

1.2 Ionisation : terminologie et notations

D'une façon générale, les processus de simple et de double ionisation par impact électronique peuvent être représentés respectivement comme suit :



où A représente la cible atomique ou moléculaire, A^+ et A^{++} les ions résiduels pour chaque processus. Les électrons incident, diffusé et éjecté(s) sont représentés respectivement par e_0 , e_a , e_b (et e_c) et ont chacun une énergie E_j et une quantité de mouvement \vec{k}_j ($j = 0, a, b, c$).

Du point de vue quantique, les électrons émergeant après la collision sont indiscernables, les termes diffusé et éjecté sont donc équivalents. Il est cependant d'usage de désigner le plus rapide comme étant le diffusé, et le (ou les) plus lent(s) comme éjecté(s).

On parle d'expériences (e,2e) (ou (e,3e)) lorsque les deux (ou trois) électrons de l'état final sont analysés en énergie et détectés en double (ou triple) coïncidence. Ces expériences sont alors dites complètes car tous les paramètres cinématiques sont déterminés (excepté le spin de l'électron).

Les contraintes cinématiques de la réaction sont alors la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement, qui s'écrivent :

$$E_0 = E_a + E_b + E_{rec} + E_I$$

$$\vec{K} = \vec{k}_0 - \vec{k}_a = \vec{k}_b + \vec{q}$$

où nous nous limitons au cas de la simple ionisation. L'extension à la double ionisation est immédiate.

E_I représente l'énergie d'ionisation correspondant à l'extraction d'un électron d'une orbitale donnée de la cible. Les énergies d'excitation de la cible dans les états initial et final sont supposées nulles, la cible étant considérée dans son état fondamental. L'énergie de recul de l'ion, E_{rec} , est très petite comparée aux énergies des autres particules : elle est négligée dans le bilan énergétique. Le vecteur \vec{q} représente le moment de recul de l'ion et \vec{K} le transfert de moment du projectile à la cible.

L'existence de trois particules libres en mouvement dans le cas de la simple ionisation permet de définir quatre types de sections efficaces : les sections efficaces totales et les sections efficaces simplement, doublement ou triplement différentielles. S'y ajoutent les sections efficaces quadruplement ou quintuplement différentielles dans le cas de la double ionisation. Dans les quelques pages qui suivent, nous nous limitons au cas de la simple ionisation.

1.3 Sections Efficaces Différentielles d'ionisation

Les résultats obtenus lors d'une expérience (e,2e) ou (e,3e) sont représentés en termes de section efficace. Cette quantité donne une mesure de la probabilité qu'un certain type de réaction se produise. En réalité, lors d'une réaction, seule une fraction des particules émises est mesurée, la détection étant limitée à une fenêtre spatiale $\Delta\Omega$ et une fenêtre énergétique ΔE . Les sections efficaces observées sont donc différentielles en énergie et/ou en angle pour les électrons incident et/ou émis. La section efficace totale décrit la réaction globale, elle tient compte de toutes les particules sortantes à travers un angle solide Ω , puis intégrées sur tout l'espace. Les sections efficaces différentielles donnent plus d'informations que celle totale puisque elles sont dépendantes de l'énergie des particules et/ou de la direction dans laquelle ces particules sont éjectées et/ou diffusées.

1.3.1 Section Efficace Simplement Différentielle

Lorsqu'une des particules dans la voie de sortie est détectée sélectivement dans une certaine direction, on parle de section efficace simplement différentielle (SESD) en angle, que l'on note $\frac{d\sigma}{d\Omega}$. Cette quantité contient évidemment une information plus détaillée sur le processus d'ionisation. Par exemple, elle présente un grand intérêt dans l'étude des structures moléculaires. En effet, Tavad [Tavad, 1966] a établi pour la première fois en 1966 la relation entre l'énergie totale de la cible et la SESD dans le cas de collisions entre électrons rapides et cible atomique ou moléculaire.

Si on s'intéresse aux aspects spectroscopiques de la cible, on définit plutôt une section efficace simplement différentielle en énergie $\frac{d\sigma}{dE}$. Elle est fonction de l'énergie des électrons incident et éjecté, et caractérise, après collision, leur distribution énergétique intégrée sur tous les angles. Elle représente un outil majeur dans l'investigation de divers champs de la physique telle que l'étude de perte d'énergie des électrons produits dans l'ionosphère terrestre.

On ne peut pas mesurer directement la SEDS en énergie $\frac{d\sigma}{dE}$, elle est obtenue en intégrant sur tous les angles d'émission les sections efficaces doublement différentielles [Ehrhardt *et al*, 1986].

1.3.2 Section Efficace Doublement Différentielle

Si, au moment de la détection, on peut avoir l'information sur l'angle d'émission et sur l'énergie de l'électron détecté, alors on parle de Section Efficace Doublement Différentielle (SEDD) $\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE}$. Cette grandeur est encore plus significative que la SEDS puisqu'elle fournit la distribution en énergie et en angle des particules diffusées ou éjectées après la collision. Même si les particules sont indiscernables, on peut, dans certaines conditions cinématiques, affirmer si la particule détectée est diffusée ou éjectée.

Le 'problème' avec les mesures des SEDD est l'incertitude concernant les processus observés, d'une part, et les états ionisés pour une énergie donnée, d'autre part. Les théories utilisées pour décrire les SEDD doivent inclure tous les processus d'ionisation possibles et tous les états pouvant contribuer aux sections efficaces. Pour lever cette incertitude, l'énergie et le moment de transfert doivent être déterminés pour spécifier le processus particulier d'ionisation contribuant. La technique de mesure (e,2e) fournit une telle information via les mesures des sections efficaces triplement différentielles.

1.3.3 Section Efficace Triplement Différentielle

La section efficace sera dite triplement différentielle (SETD) si les deux électrons de l'état final sont analysés aussi bien suivant leurs directions que leurs énergies respectives. Dans un processus (e,2e), c'est cette quantité, dite complètement différentielle, qui fournit le plus de détails sur la dynamique de l'interaction puisqu'elle fait intervenir tous les paramètres cinématiques entrant en jeu, à savoir les énergies E_0 , E_a et E_b ainsi que les angles solides Ω_a et Ω_b . On la note :

$$\sigma^{(3)} = \frac{d^3\sigma}{d\Omega_a d\Omega_b dE_a}$$

Elle représente la probabilité pour qu'un électron incident d'énergie E_0 et d'impulsion \vec{k}_0 produise, après collision avec la cible, deux électrons dans la voie de sortie d'énergies E_a et E_b et de quantité de mouvement \vec{k}_a et \vec{k}_b dans les directions Ω_a et Ω_b .

Dans les expériences (e,2e) de simple ionisation, les électrons diffusé et éjecté sont détectés en coïncidence temporelle, ce qui permet d'assurer qu'ils proviennent du même événement ionisant. De par leur sensibilité, ces expériences, dites 'expériences complètes', sont d'une importance considérable pour la compréhension des mécanismes d'ionisation. Elles permettent de tester les différents modèles théoriques proposés pour décrire l'interaction projectile-cible et ainsi de valider les approximations et/ou hypothèses qui les sous-tendent. Ces expériences seront décrites en détail dans les chapitres 3, 4 et 5 de cette thèse.

1.4 Collisions (e,2e)

Outre l'énergie E_0 du projectile, les deux paramètres cinématiques les plus importants pour la compréhension du processus d'ionisation sont le transfert de moment à la cible $\vec{K} = \vec{k}_0 - \vec{k}_a$ et le transfert de moment à l'ion résiduel $\vec{q} = \vec{K} - \vec{k}_b$ (figure 1.1).

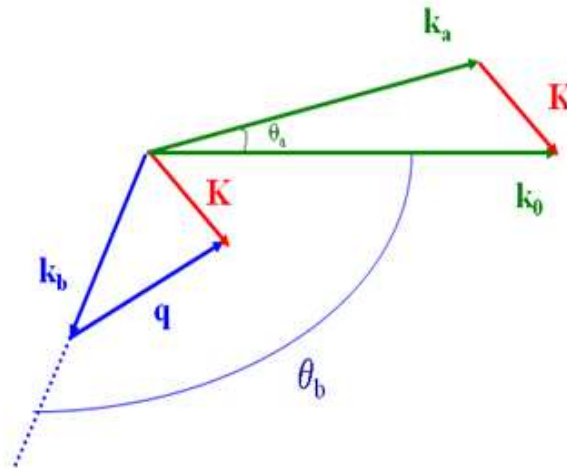


Figure 1.1 : diagramme illustrant les vecteurs moments pertinents durant l'ionisation simple.

En particulier, la valeur du transfert de moment à la cible détermine le régime collisionnel et donc le type d'information obtenue. Schématiquement, si $K < \sim 1-2$ u.a. (valeur faible ou moyenne de K), on obtient des informations concernant la dynamique de la collision. Par contre si $K > \sim 2-3$ u.a. (grande valeur de K), on trouve des informations reliées à la structure de la particule cible, telle que la distribution initiale du moment des électrons dans l'orbitale particulière ionisée.

a- Etudes de la dynamique du système

L'étude de la dynamique de la collision offre un bon moyen pour comprendre le mécanisme de la réaction (e,2e) en renseignant sur les processus qui peuvent avoir lieu au cours de la collision. Les diverses mesures utilisent des cinématiques où les électrons sortants

sont détectés avec des énergies très différentes et le moment de transfert est généralement petit comme mentionné ci-dessus. De telles expériences ont été réalisées à différentes gammes d'énergie d'impact : au voisinage du seuil [Fournier-Lagarde *et al*, 1984], quelques centaines d'eV [Ehrhardt *et al*, 1972] et au delà de 8 keV [Lahmam-Bennani *et al*, 1984]. En utilisant des cibles simples dont la structure est supposée connue telle que l'hélium [Staicu Casagrande *et al*, 2008] ou l'hydrogène moléculaire [Murray, 2005], les modèles théoriques peuvent être testés pour comprendre le processus. Nous verrons plus loin (chap. 3 et 4) comment nous avons étendu ces mesures à un domaine resté inexploré, caractérisé par un grand moment de recul de l'ion résiduel.

b- Etudes de la structure de la cible

L'étude structurale de la cible nous renseigne par exemple sur les potentiels d'ionisation des diverses orbitales de la cible, ou sur la distribution des moments des électrons ou encore sur les corrélations électroniques dans la cible. Dans ce type d'étude, les conditions de l'expérience sont choisies telles que le processus d'ionisation soit le plus simple possible, idéalement se réduisant à une interaction binaire électron-électron [Camilloni *et al*, 1978], de sorte qu'on n'obtient pas (ou très peu) d'informations sur la dynamique de la collision : l'électron incident est utilisé comme un moyen d'exploration de la structure de la cible. Pour cela, les paramètres cinématiques sont choisis tels que le moment de transfert soit assez grand (4 à 7 u.a.) et que la condition de Bethe soit remplie [Inokuti, 1971]. En bref, cette condition signifie que la quasi-totalité des transferts d'énergie et de moment à la cible doivent être absorbés par l'électron éjecté, l'ion restant étant un simple spectateur.

c- Cinématique de la collision

La section efficace triplement différentielle dépend d'un grand nombre de paramètres cinématiques dont le choix (nous venons d'en voir un exemple) détermine le type d'étude menée. En particulier, une réaction (e,2e) peut être symétrique ou asymétrique, coplanaire ou non coplanaire. Si les quantités de mouvement des électrons incident, éjecté et diffusé se trouvent dans le même plan, le processus est dit coplanaire, sinon il est non coplanaire. Dans les expériences qui se déroulent dans une géométrie symétrique, les deux électrons dans la voie de sortie sont détectés avec des énergies égales $E_a = E_b = \frac{E_0 - E_I}{2}$ par rapport à la direction du faisceau incident.

Dans notre travail, nous utilisons une géométrie coplanaire asymétrique, c-à-d que les deux électrons diffusé et éjecté se trouvent tous les deux dans le plan de collision (\vec{k}_0, \vec{k}_a) et

sont détectés avec des énergies très différentes, un électron diffusé d'énergie E_a proche de l'énergie incidente E_0 et un éjecté d'énergie E_b plus faible. Dans ces conditions, l'intensité diffusée est essentiellement concentrée vers les petits angles de diffusion, généralement θ_a inférieur à 20° , alors que l'intensité éjectée est répartie dans un large domaine d'angle, θ_b variable entre 0° et 360° . Cette distribution d'intensité se structure comme suit, suivant le domaine d'énergie :

- (i) A très haute énergie incidente (plusieurs keV), et à grand transfert d'impulsion (régime impulsif centré autour de la condition de Bethe) : la collision est caractérisée essentiellement par une interaction binaire entre l'électron incident et l'un des électrons de la cible. Dans ces conditions, le processus d'ionisation est bien décrit dans le cadre de l'approximation de Born si la cible est correctement représentée [Tavard *et al*, 1996] et le maximum¹ de la section efficace triplement différentielle est dans la direction du moment de transfert \vec{K} (le pic est alors dénommé pic binaire). Dans le cas de très faible transfert d'impulsion ($K \rightarrow 0$), on atteint le régime dipolaire où l'électron incident très rapide se comporte comme un pseudo-photon : la section efficace triplement différentielle montre deux lobes, un lobe binaire dans la direction du transfert \vec{K} et un lobe de recul dans la direction opposée. Ce lobe de recul est dû au noyau qui perturbe considérablement le mouvement de l'électron éjecté dans ces conditions cinématiques. En effet, cet électron quitte la cible après la collision avec une faible vitesse et à cause de l'influence du noyau il subit une réflexion à 180° et sort enfin dans la direction opposée au transfert.
- (ii) Dans le cas des énergies intermédiaires ($100 \text{ eV} \leq E_0 \leq 600 \text{ eV}$), la section SETD présente également un lobe binaire et un lobe de recul. Cependant, la répartition n'est plus symétrique par rapport aux directions \vec{K} et $-\vec{K}$, les deux pics sont décalés vers les grands angles [Schlemmer *et al*, 1991]. Ce résultat peut être expliqué par l'effet des interactions post-collisionnelles (PCI en anglais) entre les deux électrons sortants [Ehrhardt, 1983] ; ces deux électrons émergent avec des vitesses proches après la collision et ont tendance à se repousser mutuellement, l'électron éjecté est ainsi dévié par rapport à la direction du transfert. Ces effets ne peuvent être reproduits par les théories d'ordre 1 telle la première approximation de Born. Il est alors indispensable d'utiliser les modèles qui tiennent compte de ces interactions [Brauner *et al*, 1989]. De

¹ Tout au moins pour l'ionisation d'une orbitale de type s.

tels modèles, comme CCC, DWBA-G, BBK sont brièvement décrits vers la fin de ce chapitre (voir pages 23-25).

- (iii) Dans le cas de basses énergies ($E_0 \leq 100$ eV), il apparaît un lobe binaire et un lobe de recul décalés également vers les grands angles par rapport au transfert. Le processus est ici beaucoup plus complexe : aux effets PCI cités ci-dessus s'ajoutent des effets de polarisation de la cible par le projectile, des effets de distorsion des électrons émergents [Tweed, 1980], les effets de collision multiple, etc....

1.5 Théorie de la diffusion

Dans ce paragraphe, nous présentons d'une façon succincte les principes de base de la théorie des collisions. Les aspects généraux relatifs aux trois phases d'interaction : initiale, intermédiaire et finale lors d'une collision sont exposés dans plusieurs manuels de base tels que [Cohen-Tannoudji, 1997] et [Messiah, 1964] et présentés en détail dans [El Marji, 1996], [Taouil, 2000] et [Catoire, 2006].

a- Description du phénomène

Les systèmes étudiés sont constitués d'un électron projectile et d'une cible atomique ou moléculaire, selon le cas. Conformément aux conditions usuelles d'expérimentation, nous considérons, dans le référentiel du laboratoire, les cibles au repos et orientées de façon quelconque, bombardées par un faisceau monocinétique d'électrons.

Dans les divers processus étudiés, des paramètres clés sont utilisés, tels que la direction d'incidence, les angles de diffusion et d'éjection, la vitesse,... le but étant d'établir une relation entre les états initial et final du système. Du point de vue de la mécanique quantique, cela est exprimé en termes de ce qu'on appelle amplitude de diffusion.

Dans un premier temps, on considère une collision entre une particule chargée et un centre diffuseur de masse supposée très grande devant celle du projectile de sorte que le centre de masse du système sera pris comme étant le centre de la cible. On notera par μ la masse réduite du système et \vec{r} le vecteur position du projectile par rapport au centre diffuseur. E_0 et \vec{k}_0 , E_a et \vec{k}_a représentent l'énergie et le moment du projectile dans le canal d'entrée et de sortie.

Dans la zone d'interaction, le potentiel de la cible est supposé de courte portée, une partie de l'onde va être diffusée alors qu'une autre partie va être simplement transmise. La forme globale de l'onde après collision est donc la superposition d'une onde transmise et d'une onde

diffusée. Cette forme est déduite de l'optique ondulatoire, et doit s'écrire, dans une direction quelconque, en $\frac{\exp(ikr)}{r}$ pour de grandes distances loin du potentiel diffuseur. Comme le potentiel n'est pas en général isotrope, l'amplitude de l'onde dépend de la direction considérée.

On peut donc écrire l'onde sous la forme

$$\psi(\vec{k}, \vec{r}) = A(\exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}) + \frac{f_k(\theta, \varphi)}{r} \exp(ikr)) \quad (1)$$

Cette expression est dite fonction d'onde asymptotique, loin du centre de diffusion où le potentiel n'agit plus. A est une constante de normalisation indépendante de r et des angles θ et φ et $f_k(\theta, \varphi)$ est l'amplitude de diffusion.

b- La section efficace

La section efficace de diffusion est définie comme étant la mesure du taux de particules qui ont subi une diffusion déterminée dans l'espace sur le nombre de particules incidentes. La densité de particules est proportionnelle à la densité de probabilité de présence $\rho = |\Psi|^2 = \Psi\Psi^*$ et le nombre N de particules entrant dans un volume τ par unité de temps est :

$$N = \frac{d}{dt} \int_{\tau} \rho d\tau$$

soit

$$N = \int_{\tau} (\Psi^* \frac{d}{dt} \Psi + \Psi \frac{d}{dt} \Psi^*) d\tau$$

en utilisant l'équation de Schrödinger et en appliquant le théorème d'Ostrogradsky :

$$N = \int_s \vec{j} \cdot \vec{n} ds$$

Dans cette équation s représente la surface qui entoure le volume τ et \vec{n} le vecteur unitaire normal à l'élément de surface ds , \vec{j} étant le courant de particules.

Ce courant doit satisfaire l'équation de continuité :

$$\frac{d\rho}{dt} + \vec{\nabla} \cdot \vec{j} = 0$$

En utilisant l'équation (1), le flux \vec{j}_a sortant de l'interaction est donné par l'expression (en négligeant les termes en $1/r^3$) :

$$|\vec{j}_a| = \frac{h\vec{k}_a}{\mu r^2} |f_k(\theta, \varphi)|^2$$

Le nombre de particules entrant dans le détecteur, noté W, dépend de l'angle de diffusion et de la surface du détecteur ds :

$$W = J_a \cdot ds = J_0 \frac{k_a}{k_0} |f_k(\theta, \varphi)|^2 d\Omega$$

où J_0 représente le flux de particules incidentes.

Le rapport $\frac{W}{J_0}$ est une quantité infinitésimale, elle sera notée $d\sigma$ et représente la section efficace de diffusion, différentielle par rapport à $d\Omega$:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{k_a}{k_0} |f_k(\theta, \varphi)|^2$$

c- Matrice de transition T

En utilisant les notations de Dirac, l'amplitude de diffusion f est donnée par l'équation :

$$f = -2\pi^2 \langle \psi_{k_a} | V | \psi_{k_0} \rangle \quad (2)$$

ψ_{k_0} décrit la fonction d'onde incidente, ψ_{k_a} décrit la fonction d'onde finale et V est le potentiel qui décrit l'interaction entre l'électron incident et la particule cible.

L'équation (2) peut être encore écrite en terme de matrice de collision. La matrice de collision relie la fonction d'onde qui décrit le système avant la collision à la fonction d'onde qui décrit le système après la collision [Joachain, 1983]. Elle peut prendre plusieurs formes, on cite la matrice de diffusion (matrice-S), celle de transition (matrice-T), la matrice-R et la matrice-K. Pour plus d'informations concernant ces matrices et bien d'autres genres de matrice de collision, on pourra se référer à [Joachain, 1983] et à [McCarthy, 1995]. Les éléments de la matrice de transition (T_{0a}) représentent la transition entre la fonction d'onde incidente ψ_{k_0} et celle finale ψ_{k_a} . La matrice T est définie par

$$T | \Psi_{k_0} \rangle = V | \Psi_{k_a} \rangle$$

L'équation (2) peut être réécrite en termes de matrice-T comme suit :

$$f = -2\pi^2 \langle \psi_{k_0} | T | \psi_{k_a} \rangle$$

Cette approche générale est appliquée dans le cas particulier de l'ionisation par impact électronique afin de chercher la section efficace, soit par exemple celle triplement différentielle :

$$\sigma^{(3)} = \frac{d^3\sigma}{d\Omega_a d\Omega_b dE_a} \sim (2\pi^4) \frac{k_a k_b}{k_0} |T_{0a}|^2$$

Une description théorique détaillée du processus d'ionisation est très compliquée, voire même parfois impossible. Des méthodes approximatives sont alors nécessaires pour évaluer les

éléments de la matrice-T. Il existe plusieurs approximations valides, cependant, avant d'en discuter, il est important de définir l'équation de Lippmann-Schwinger.

d- Equation de Lippmann-Schwinger

Il est possible d'obtenir une solution de la fonction d'onde Ψ en utilisant l'équation de Lippmann-Schwinger qui tient compte des conditions limites du problème de diffusion. On commence par réécrire l'équation de Schrödinger indépendante du temps

$$[\nabla^2 + k^2]\Psi(r) = V(r)\Psi(r)$$

où la solution générale de cette équation s'écrit comme :

$$\Psi(r) = \Phi(r) + \int G_0(r, r')V(r')\Psi(r')dr' \quad (3)$$

$\Phi(r)$ est la solution de l'équation homogène

$$[\nabla^2 + k^2]\Phi(r) = 0$$

et $G_0(r, r')$ est la fonction de Green de l'onde entrante (+) et celle sortante (-) définie, en utilisant les notations de Dirac, comme suit :

$$G_0^{(\pm)}(r, r') = \langle r | G_0^{(\pm)} | r' \rangle$$

L'opérateur de la fonction de Green est défini par

$$G_0(E^{(\pm)}) \equiv \frac{1}{E^{(\pm)} - K}$$

En utilisant l'opérateur de la fonction de Green, on peut réécrire la fonction d'onde comme

$$\Psi(r) = \Phi(r) + G_0^{(\pm)}V\Psi^{(\pm)} \quad (4)$$

C'est l'équation de Lippmann-Schwinger (nommée après Bernard A. Lippmann et Julian Schwinger). L'équation de Schrödinger peut être remplacée par l'équation de Lippmann-Schwinger afin de discuter les différentes méthodes d'approximation utilisées pour calculer les sections efficaces [Weinberg, 1995].

e- Développement de Born

L'approche développée par Born [Born, 1926] est l'une des approximations les plus utilisées pour le calcul des sections efficaces, elle joue un rôle dominant dans l'étude des collisions atomiques. Dans cette approximation, on suppose que le potentiel diffuseur décrivant l'interaction coulombienne du projectile avec les différentes particules de la cible est petit devant l'énergie totale de la cible et celle de l'électron incident (rapide). Dans l'Hamiltonien du système, le potentiel diffuseur est donc traité comme une perturbation.

En effet, pour obtenir l'équation de Schrödinger (3), on commence par l'approximation d'ordre zéro et on augmente le nombre d'ordres d'approximation pour produire une séquence de fonctions.

$$\begin{aligned}\Psi_0(r) &= \Phi(r) \\ \Psi_1(r) &= \Phi(r) + \int G_0(r, r')V(r')\Psi_0(r')dr' \\ &\vdots \\ \Psi_n(r) &= \Phi(r) + \int G_0(r, r')V(r')\Psi_{n-1}(r')dr'\end{aligned}$$

Si on suppose que ces fonctions convergent vers une solution exacte, on peut obtenir les séries de Born,

$$\Psi(r) = \Phi(r) + \int G_0(r, r')V(r')\Psi_0(r')dr' + \int G_0(r, r')V(r')\Psi_1(r')dr' + \dots$$

En introduisant l'équation de Lippmann-Schwinger (4) dans les séries de Born, on pourra utiliser l'approximation de Born pour trouver l'amplitude de diffusion f , soit :

$$f = -2\pi^2 \left\langle \psi_{k_a} \left| V + VG_0^{(\pm)}V + VG_0^{(\pm)}VG_0^{(\pm)}V + \dots \right| \psi_{k_0} \right\rangle$$

f- Première approximation de Born (FBA)

L'ordre correspondant à la série de Born représente le nombre d'interactions de la particule incidente avec la cible : une fois pour Born 1, deux fois pour Born 2... etc. La première approximation de Born consiste à ne retenir que le premier terme du développement précédent, c'est à dire à négliger la contribution des termes contenant les puissances supérieures à 1. Ce traitement est valable pour des électrons incidents d'énergie suffisamment élevée relativement aux électrons de la cible. Dans ce cadre, on peut effectuer une analogie entre impact électronique et impact photonique, valable dans le cas où l'électron incident a une énergie assez grande et transfère peu de quantité de mouvement à la cible. La collision est alors suffisamment « rapide » pour considérer ces deux processus comme identiques en terme de mécanismes. Ceci se justifie théoriquement par le fait que dans ce cas, l'approximation de Born est pleinement remplie et le formalisme entre impact de photon et d'électron est assez similaire, c'est ce qui s'appelle la limite dipolaire. Cependant les conditions expérimentales dans lesquelles ont été effectuées les expériences décrites dans ce travail ne permettent pas une telle analogie.

1.6 Modèles théoriques

L'étude expérimentale et théorique de l'ionisation ($e,2e$) d'atomes a fait l'objet de nombreuses investigations. En effet, la SETD est une grandeur essentielle pour la compréhension des processus d'ionisation car contenant l'information la plus détaillée sur ces processus, comme nous l'avons souligné plus haut. Depuis les premières mesures de cette grandeur [Ehrhardt *et al*, 1969] et [Amaldi *et al*, 1969], diverses méthodes théoriques ont été élaborées pour comprendre les mécanismes de la réaction. Dans ce qui suit, nous présentons succinctement certains modèles qui nous serviront le long du présent travail.

a- Modèle « Brauner, Briggs et Klar » (BBK)

Ce modèle, connu sous l'acronyme BBK relatif aux trois auteurs qui l'ont proposé la première fois dans le cadre de l'atome d'hydrogène [Brauner *et al*, 1989], est basé sur une description asymptotique exacte de l'état final de la cible et s'écrit comme le produit de trois ondes coulombiennes (d'où l'autre nom du modèle, 3C) décrivant l'interaction mutuelle entre les électrons éjecté et diffusé ainsi que l'ion résiduel. Les auteurs de ce modèle ont utilisé une fonction d'onde symétrique pour décrire l'état des trois particules dans le continuum d'énergie résultant de la simple ionisation de l'atome d'hydrogène par impact électronique. Cette fonction a auparavant été proposée, mais sans être appliquée, par [Garibotti *et al*, 1980] dans le cadre d'un modèle incluant la fonction 3C pour des collisions par impact d'ions. Brièvement, sa principale caractéristique est d'être asymptotiquement ($r \rightarrow \infty$) exacte pour le traitement de l'interaction Coulombienne à trois corps, entre les électrons diffusé et éjecté et l'ion résiduel. Ce modèle a été repris par plusieurs auteurs pour décrire l'ionisation par impact électronique des gaz rares He à Kr [Dal Cappello *et al*, 1995], mais également la double ionisation de l'hélium [Joulakian, 1992] et [Lamy, 1994]. Pour ce faire, le problème complexe à N-électrons a été réduit à un seul électron actif (celui qui sera éjecté après collision), l'ion résiduel étant décrit comme un proton.

En 1993, Dal Cappello et ses collaborateurs [Dal Cappello *et al*, 1993] ont développé une fonction d'onde BBK approximative, dite 2C car basée sur deux ondes Coulombiennes, l'électron diffusé rapide étant décrit par une onde plane. Cette fonction donne un accord assez satisfaisant avec les expériences ($e,2e$) et ($e,3e$) sur les gaz rares faites par l'équipe d'Orsay [Catoire *et al*, 2006] [Lahmam-Bennani *et al*, 1989, 1992] puisque le modèle proposé initialement [Brauner *et al*, 1989] n'est pas très facile à appliquer dans le cas des gaz nobles.

Nous verrons que le modèle BBK approximé [Dal Cappello *et al*, 1993] montre un accord raisonnable en comparant avec nos résultats sur la simple ionisation d'argon, la comparaison étant discutée dans le chapitre 5.

b- Modèle « Approximation de Born aux ondes distordues » (DWBA)

Cette méthode notée DWBA (de l'anglais distorted wave Born approximation) indique la présence de distorsion dans les fonctions d'onde de l'électron incident et de ceux dans la voie de sortie. L'électron incident est représenté par une onde distordue qui est calculée dans le potentiel d'échange statique de l'atome, tandis que les électrons diffusé et éjecté sont représentés par des ondes distordues calculées dans le potentiel d'échange de l'ion. Les fonctions d'onde distordues utilisées dans ce modèle sont détaillées dans [Zhang *et al*, 1992].

Il est important de noter que, bien qu'il tienne compte de la diffusion élastique des électrons incidents et éjectés par l'atome et par l'ion, ce modèle est une approximation de premier ordre puisqu'il ne tient compte qu'une seule fois de l'interaction ionisante projectile-cible.

A énergie basse du projectile, le potentiel d'interaction n'est plus négligeable comme dans le cas de l'approximation de Born. Le projectile subit alors l'effet d'un potentiel de distorsion dans les voies d'entrée et de sortie. Ce potentiel représente une interaction de courte portée entre chaque électron entrant ou sortant de la cible dans son état initial et final. Les électrons incident, diffusé et éjecté sont donc représentés par des ondes distordues. Au delà d'une certaine distance, l'effet de ce potentiel devient pratiquement nul.

Au contraire, à une énergie incidente et diffusée très grandes, les effets de distorsion et d'échange sont faibles pour les électrons incident et diffusé. Par conséquent, remplacer les ondes distordues correspondant à ces électrons par des ondes planes est entièrement justifié, d'où le modèle « plane wave Born approximation » (PWBA) [Dal Cappello *et al*, 1984].

Signalons que plusieurs versions du modèle DWBA ont été reportées dans la littérature. Par exemple, le modèle hybride DWBA-R qui a été introduit par Bartschat et Burke [Bartschat *et al*, 1987] décrit l'interaction électron éjecté-ion résiduel par un formalisme de matrice-R. Dans sa version « premier ordre d'interaction projectile-cible » ce modèle est dénoté DWB1-RM. Il est noté DWB2-RM lorsqu'on tient compte de cette interaction au deuxième ordre [Reid *et al*, 1998, 2000]. Une autre version du modèle DWBA a été décrite par Kheifets [Kheifets *et al*, 2008]. La prise en compte de l'interaction entre les électrons dans l'état final rend très difficile le calcul de la matrice de transition. Une autre solution pour

modéliser cette interaction dans la description de l'état final est de corriger le modèle DWBA par un facteur supplémentaire appelé facteur de Gamow, d'où le nom DWBA-G.

L'utilisation du modèle DWBA a conduit à un bon accord avec les expériences à énergie intermédiaire (< 1 keV) de Bickert *et al* [Bickert *et al*, 1991] et de Lohmann *et al* [Lohmann *et al*, 1998]. Les résultats de cette approximation dans ses diverses formes seront comparés à nos mesures et sa validité discutée dans les chapitres 3 et 4.

c- Modèle «Convergent Close Coupling » (CCC)

Le modèle CCC a été proposé par Massey et Mohr [Massey *et al*, 1933] et successivement développé par différents auteurs, par exemple dans le cas de l'excitation [Fursa *et al*, 1997] et de l'ionisation de l'hélium [Bray *et al*, 1999]. La méthode CCC est une approche complètement numérique basée sur le développement de la fonction d'onde totale du système en termes de somme de produits des états propres de l'hamiltonien et de fonctions inconnues décrivant le mouvement du projectile.

Dans le cas de l'ionisation de l'hélium qui nous intéresse dans le contexte de ce travail, une restriction à la précision de cette approche théorique est la description de la corrélation entre les deux électrons dans l'état fondamental de la cible. Kheifets et Bray ont abordé ce problème en utilisant successivement deux fonctions d'ondes initiales, l'une est un développement Hylleraas de 20 termes [Hylleraas, 1929], et l'autre un développement de la fonction multi configuration de Hartree-Fock sur 18 paramètres [Froese-Fisher, 1973].

La méthode CCC a permis à ce jour de reproduire avec succès, aussi bien qualitativement que quantitativement, tout d'abord les expériences de Chandrasekhar *et al* [Chandrasekhar *et al*, 1955] qui mesurent les sections efficaces totales d'excitation et d'ionisation de He ; puis ensuite toute une série d'expériences complètes soit par impact électronique, type (e,2e), soit de photoionisation.

Nous verrons plus loin dans le chapitre 4, lors de la comparaison de nos mesures sur He avec le modèle CCC, un excellent accord qui valide le fait que ce modèle est considéré par la communauté scientifique comme un des meilleurs modèles qui décrivent l'ionisation de He. Cependant, la principale limitation de ce modèle est que son extension à des cibles autres que H ou He est problématique. Par exemple, pour l'ionisation 2s du Ne ($1s^2 2s^2 2p^6$) la méthode CCC traite la cible comme un heliumoïde avec un cœur $1s^2 2p^6$ gelé et deux électrons 2s actifs. L'approximation est plutôt sévère.

1.7 Application aux problèmes moléculaires

Le calcul théorique dans le cadre moléculaire présente beaucoup plus de difficultés que dans le cas atomique. Pour cette raison, l'ionisation de molécules, à l'inverse de l'ionisation d'atomes, a fait l'objet de beaucoup moins d'investigations expérimentales et théoriques. En effet, le calcul des sections efficaces différentielles nécessite une description adéquate des états du continuum, c'est à dire les électrons incident, éjecté et diffusé et leurs interactions mutuelles. On peut, moyennant certaines approximations, venir à bout des calculs analytiques et numériques dans le cas atomique. On se heurte par contre à des difficultés supplémentaires dans le cas des molécules à cause, entre autres, de la présence de plusieurs centres diffuseurs. Dans ce travail, nous avons comparé nos mesures moléculaires aux résultats de deux modèles théoriques représentant l'état de l'art des modèles décrivant l'ionisation des molécules par impact électronique. La discussion sera détaillée dans les chapitres 3 et 4. Nous décrivons dans la suite très brièvement ces deux modèles : le « first Born approximation - two centre continuum » (FBA-TCC) développé par l'équipe de Metz [Weck *et al*, 2002] et le modèle « molecular 3-body distorted wave - orientation averaged molecular orbital » (M3DW-OAMO) développé par [Gao *et al*, 2005a].

a- Modèle FBA-TCC

Ce modèle, basé sur la première approximation de Born, a été développé par [Chuluunbaatar *et al*, 2004] et utilise l'approximation TCC (two centre continuum) pour l'étude de l'ionisation simple d'une cible moléculaire. Il a été appliqué dans le cas de la simple ionisation de H_2 par des projectiles électroniques rapides avec éjection d'un électron considéré lent par rapport à celui diffusé [Weck *et al*, 2002]. Ces conditions permettent de décrire les deux électrons incident et diffusé par des ondes planes. Une des hypothèse qui ont permis le développement de ce modèle a été de considérer le processus de simple ionisation comme étant purement électronique, ce qui est pleinement justifié dans les expériences (e,2e) de résolution moyenne. Les auteurs ont pu donc intégrer sur tous les états vibrationnels et rotationnels de l'ion. En plus, si la molécule n'est pas orientée, on moyenne sur toutes les orientations possibles de la molécule.

L'état initial de la cible est décrit par des fonctions d'onde sophistiquées, type Heitler-London ou Wallis, voir [Weck *et al*, 2001]. Le problème intervient dans la description de

l'état final du système. On considère l'ion résiduel dans un état lié non-dissociatif et on le décrit par une combinaison linéaire d'orbitales atomiques (LCAO).

L'approximation TCC intervient dans la description de l'électron diffusé dans la voie de sortie où on doit tenir compte de l'interaction avec l'ion résiduel avec une description correcte de la structure moléculaire. Des solutions exactes du continuum pour l'électron éjecté peuvent être envisagées mais les calculs deviennent extrêmement longs et fastidieux et donc pas réalisables. L'approximation propose donc de représenter l'électron diffusé comme un produit entre une onde plane et deux termes du continuum décrivant l'interaction de l'électron éjecté avec chacun des noyaux. De cette façon, les actions des noyaux sur l'électron éjecté sont traitées de manière égale. Dans la description de la simple ionisation de H_2 les auteurs [Weck *et al*, 2002] ont dû évaluer aussi l'influence de l'électron lié par l'introduction d'une charge effective. Cette modification a donné lieu à une approximation, probablement plus réaliste, la TEC (two-effective center approximation), qui doit être appliquée dans le cas d'une molécule orientée, mais elle joue un rôle moins important dans le cas présent d'une molécule non orientée.

Pour des géométries asymétriques comme celle étudiées ici où l'électron diffusé est beaucoup plus énergétique que l'éjecté, nous pouvons négliger dans la matrice de transition les termes d'échange et de capture et ne garder que le terme direct où les coordonnées de l'électron incident sont associées à l'électron diffusé. Le potentiel d'interaction décrit l'interaction purement coulombienne entre l'électron incident et la cible dans la voie d'entrée.

Ainsi qu'indiqué ci-dessus, il a été prouvé [Weck *et al*, 2002] que le modèle FBA-TCC donne un résultat satisfaisant en comparant avec des mesures de SETD [Chérid *et al*, 1989] faites sur l'ionisation de H_2 avec une énergie incidente $E_0 \sim 4,1$ keV. La comparaison avec nos mesures dans le chapitre 4 permet de tester ce modèle dans des conditions plus sévères, à savoir à énergie plus basse et à moment de recul de l'ion plus important.

b- Modèle M3DW-OAMO

Ce modèle (Molecular 3-body Distorted Wave approximation) est une extension au cas moléculaire du modèle DWBA. Il s'agit d'une approche à deux centres, où les trois électrons (incident, diffusé et éjecté) sont décrits par des ondes distordues. L'interaction post collisionnelle (PCI) dans l'état final entre les deux électrons du continuum est ainsi prise en compte. La fonction de l'état initial est moyennée sur toutes les orientations de l'axe moléculaire (Orientation Averaged Molecular Orbital, OAMO).

En effet, l'expérience ne pouvant pas distinguer entre les orientations de la molécule, il faudrait d'abord calculer les SETD pour chaque orientation et ensuite en faire la moyenne. Mais les auteurs de ce modèle [Gao *et al*, 2005a] ont montré qu'il est possible de faire l'inverse : dans le cadre de l'approximation OAMO ils ont d'abord moyenné sur toutes les orientations de la molécule dans l'état initial et ensuite utilisé la fonction d'onde initiale ainsi obtenue pour calculer la section efficace triplement différentielle. Les auteurs ont également montré que l'approximation OAMO est valable tant que le moment q absorbé par l'ion reste faible, typiquement inférieur à l'unité atomique [Gao *et al*, 2005b]. Nous verrons dans le chapitre 4, lors de la comparaison avec nos expériences, que ce point constitue la faiblesse essentielle de ce modèle.

1.8 Bibliographie

- Amaldi Jr U, Egidi A, Marconero R and Pizzella G, Rev. Sci. Instrum. **40**, 1001 (1969)
- Bartschat K and Burke P G, J. Phys. B, **20**, 3191 (1987)
- Bickert P, Hink W, Dal Cappello C and Lahmam-Bennani A, J. Phys. B, **24**, 4603, (1991)
- Born M, Z. Phys., **37**, 863 (1926)
- Brauner M, Briggs J S and Klar H, J. Phys. B, **22**, 2265, (1989)
- Bray I, Beck J and Plottke C, J. Phys. B, **32**, 4309 (1999)
- Camilloni R, Giardini-Guidoni A, McCarthy I E and Stefani G, Phys. Rev. A, **17**, 1634 (1978)
- Catoire F, Staicu Casagrande E M, Nekkab M, Dal Cappello C, Bartschat K and Lahmam-Bennani A, J. Phys. B, **39**, 2827 (2006)
- Catoire F, Thèse de Doctorat, Université Paris Sud XI, (2006), en ligne à l'adresse : http://tel.archives-ouvertes.fr/docs/00/10/79/69/PDF/these_catoire.pdf
- Chandrasekhar S and Herzberg G, Phys. Rev., **98**, 1050 (1955)
- Cherid M, Lahmam-Bennani A, Duguet A, Zuraes R W, Lucchese R R, Dal Cappello M C, J. Phys. B, **22**, 3483 (1989)
- Chuluunbaatar O, Joulakian B, Tsookhuu K and Vinitsky S V, J. Phys. B, **37**, 2607 (2004)
- Cohen-Tannoudji C, Diu B, Laloë F, Mécanique quantique, Tome II, Editeur Hermann (1997)
- Dal Cappello C, Tavard C, Lahmam-Bennani A, Dal Cappello M C, J. Phys. B, **17**, 4557, (1984)
- Dal Cappello C, Joulakian B and Langlois J, Journal de Physique IV, **03**, 125 (1993)
- Dal Cappello C, Hda H and Roy A C, Phys. Rev. A, **51**, 3735 (1995)
- Ehrhardt H, Hesselbacher K H, Jung K, Schulz M and Willmann K, J. Phys. B, **5**, 2107 (1972)
- Ehrhardt H, Jung K, Knoth G and Schlemmer P, Z. Phys. D., **1,3** (1986)
- Ehrhardt H, Comments At. Mol. Phys., **13**, 115 (1983)
- El Marji B, Thèse de Doctorat, Université Paris Sud XI, (1996)
- Fournier-Lagarde P, Mazeau J and Huetz A, J. Phys. B, **17**, L591 (1984)
- Froese-Fisher C, J. Comput. Phys., **13**, 502, (1973)
- Fursa D and Bray I, Phys. Rev. A, **6**, 4606, (1997)
- Garibotti G and Miraglia J E, Phys. Rev. A, **21**, (1980)
- Gao J F, Madison D H and Peacher J L, Phys. Rev. A, **72**, 020701 (2005)
- Gao J F, Peacher J L and Madison D H, J. Chem. Phys., **123**, 204302 (2005)
- Hylleraas E A, Z. Phys., **54**, 347 (1929)
- Inokuti M, Rev. Mod. Phys, **43**, 297 (1971)
- Joachain C J, *Quantum collision theory*, North-Holland Physics Publishing : Amsterdam, (1983)
- Joulakian B, Dal Cappello C and Brauner M, J. Phys. B, **25**, 2863 (1992)
- Kheifets A S, Naja A, Staicu Casagrande E M and Lahmam-Bennani A, J. Phys. B, **41**, 145201 (2008)
- Lahmam-Bennani A, Wellenstein H F, Dal Cappello C and Duguet A, J. Phys. B, **17**, 3159 (1984)
- Lahmam-Bennani A, Dupré C and Duguet A, Phys. Rev. Lett, **63**, 1582 (1989)
- Lahmam-Bennani A, Duguet A, Grisogono A M and Lecas M, J. Phys. B, **25**, 2873 (1992)
- Lamy P, Dal Cappello C, Joulakian B and Le Sech C, J. Phys. B, **27**, 3559 (1994)
- Lohmann B, Cavanagh S, Haynes M A, Taouil I, Lahmam-Bennani A, Aust. J. Phys., **51**, 679, (1998)
- Massey H S and Mohr C B O, Proc. Roy. Soc. A, **140**, 612, (1933)
- McCarthy I.E. and Weigold E, Advances in Atom. Molec. and Opt. Phys., **27**, 201, (1990)
- McCarthy I E and Weigold E, *Electron-atom collisions*, Cambridge University press (1995)

Messiah A, *Mécanique quantique*, tome II, Dunod Paris, chapitre XIX (1964)

Murray A J, *J. Phys. B*, **38**, 1999 (2005)

Reid R H G, Bartschat K and Raeker A, *J. Phys. B*, **31**, 563 (1998)

Reid R H G, Bartschat K and Raeker A, *J. Phys. B*, **33**, 5261 (2000)

Schlemmer P, Srivastava M K, Rösel T and Ehrhardt H, *J. Phys. B*, **24**, 2719(1991)

Staicu Casagrande E M, Naja A, Mezdari F, Lahmam-Bennani A, Bolognesi P, Joulakian B, Chuluunbaatar O, Al-Hagan O, Madison D H, Fursa D V and Bray I, *J. Phys. B*, **41**, 025204 (2008)

Taouil I, Thèse de Doctorat, Université Paris Sud XI, (2000)

Tavard C, *Cahiers Phys.*, **20**, 397, (1966)

Tavard C and Najjari B, *Int. J. Quantum Chem.*, **60**, 657 (1996)

Tweed R J, *J. Phys. B*, **13**, 4467 (1980)

Weck P, Fojon O A, Hanssen J, Joulakian B, and Rivarola R, *Phys. Rev. A*, **63**, 042709 (2001)

Weck P, Fojon O A, Joulakian B, Stia C R, Hanssen J and Rivarola R, *Phys. Rev. A*, **66**, 012711 (2002)

Weinberg S, *The Quantum Theory of Fields*, Cambridge University Press (1995)

Zhang X, Whelan C T, Walters H R J, Allan R J, Bickert P, Hink W, and Schönberger S, *J. Phys. B*, **25**, 4325 (1992)

Chapitre 2

Dispositif expérimental

2.1 Introduction

La section efficace multiplement différentielle d'ionisation simple ou double par impact électronique représente la probabilité qu'un (ou deux) électron(s) soi(en)t éjecté(s) de l'atome ou la molécule cible dans une direction précise et avec une énergie fixée (cf. chapitre 1). Pour obtenir des informations complètes sur le processus d'ionisation. On utilise la technique de coïncidence dite (e,2e) pour la simple ionisation et (e,3e) pour la double ionisation, où les mesures effectuées associent à la sélection en énergie et en angle des électrons entrants et sortants une corrélation temporelle sur leur temps de vol jusqu'aux détecteurs. La détection des électrons en coïncidence permet donc de s'assurer qu'ils sont effectivement issus de la même collision. Cette technique sera détaillée dans la suite de ce chapitre.

Nous utilisons un spectromètre d'électrons à double ou triple coïncidence, dans une géométrie coplanaire asymétrique où les électrons diffusés sont détectés dans un analyseur multi-angle dans un domaine fixé d'angles de diffusion θ_a , tandis que l'angle des électrons éjectés varie dans le plan de collision, plan formé par les vecteurs quantités de mouvement des électrons incident et diffusé et qui est perpendiculaire au jet de gaz. Notre dispositif expérimental actuel résulte d'importantes modifications apportées successivement à celui initialement utilisé dans le groupe et décrit dans la thèse de [Dupré, 1990]. En effet, jusqu'en 1995, le dispositif expérimental utilisé par le groupe (e,2e)/(e,3e) d'Orsay était constitué de deux analyseurs sphériques pour chacun des électrons éjectés et d'un analyseur cylindrique pour la détection de l'électron diffusé. Durant sa thèse de doctorat, Brahim El Marji [El Marji, 1996], a développé deux nouveaux analyseurs multi-angle identiques, pour chacun des électrons éjectés. Ces analyseurs sont du type toroïdal, permettant de former une image des électrons issus du volume de collision pour une énergie donnée en préservant la distribution

angulaire de ces électrons. En 2005, Fabrice Catoire [Catoire, 2006] durant son travail de doctorat a remplacé l'analyseur cylindrique pour détecter l'électron diffusé à angle fixe par un nouvel analyseur toroïdal pour la détection multi-angle de l'électron diffusé.

Dans ce chapitre, nous allons décrire brièvement les différentes composantes du dispositif expérimental actuel, le système d'acquisition ainsi que la technique de coïncidence, une description plus détaillée ayant été donnée précédemment dans la thèse de F. Catoire [Catoire, 2006].

2.2 Description du dispositif expérimental

La figure 2.1 représente une vue générale du dispositif expérimental, constitué d'un canon à électrons (non représenté sur la figure), d'un double analyseur toroïdal (désignés par Tore b et Tore c) pour les électrons éjectés et du nouvel analyseur toroïdal (Tore a) pour les électrons diffusés.

La technique des faisceaux croisés constitue la base de la mesure des sections efficaces différentielles : la collision a lieu dans une région appelée volume de collision, où le faisceau d'électrons incidents intercepte à angle droit le jet de gaz. Dans nos expériences, nous considérons, au moins en première approximation, ce volume comme un centre ponctuel. Sa dimension effective est de l'ordre de $1,5 \text{ à } 2 \text{ mm}^3$.

2.2.1 Enceinte à vide

L'enceinte à vide est formée d'un cylindre d'aluminium de 120 cm de diamètre et de 100 cm de haut. Deux couronnes dentées concentriques, indépendantes, montées sur des roulements à billes reposent sur la base de l'enceinte. La première supporte le canon à électrons et la deuxième le double analyseur toroïdal permettant ainsi leur rotation autour de l'axe vertical de l'enceinte (et du jet de gaz). Le tore a repose sur la base de l'enceinte, et est muni de réglages propres en azimut et en hauteur.

Dans l'enceinte est maintenu un vide de l'ordre de $\sim 1 \times 10^{-6}$ Torr ($\sim 2 \text{ à } 3 \times 10^{-5}$ Torr en présence du gaz) grâce à deux pompes à diffusion d'huile couplées à deux pompes primaires à palettes.

A l'intérieur de l'enceinte, la trajectoire des électrons et donc la distribution angulaire des électrons éjectés peuvent être faussées par l'existence de perturbations magnétiques. Ces perturbations peuvent avoir deux origines. La première est le champ magnétique terrestre : il est compensé par trois paires de bobines, placées orthogonales deux à deux en configuration Helmholtz.

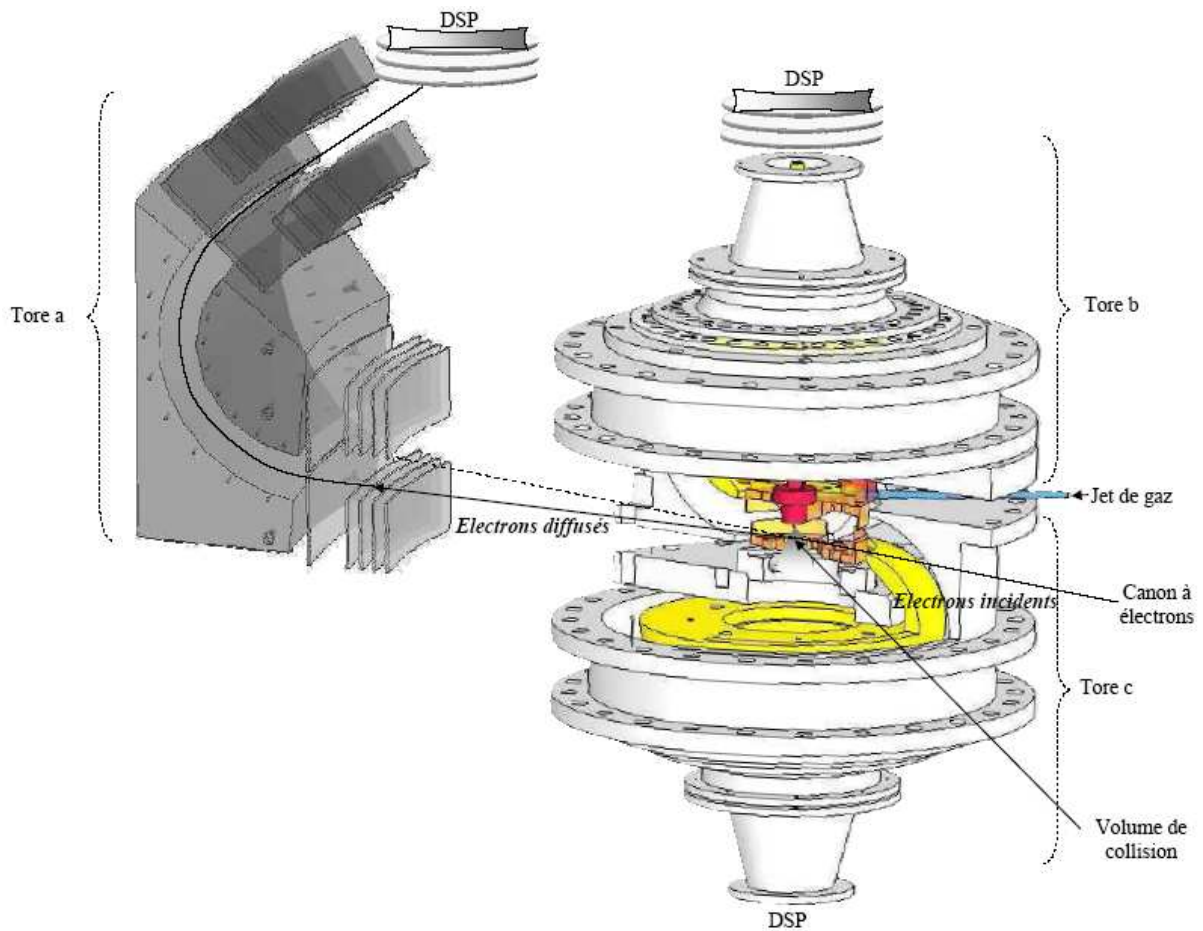


Figure 2.1 : Vue de l'ensemble du dispositif expérimental dans sa version actuelle.

La deuxième correspond aux perturbations créées par des masses métalliques ou des courants importants au voisinage de l'enceinte : elles sont rendues négligeables grâce au blindage de l'enceinte en μ -métal, un alliage de nickel et de fer (77% nickel, 15% fer, plus cuivre et molybdène) qui présente une très haute perméabilité magnétique.

2.2.2 Sources

Les partenaires des collisions étudiées parviennent au centre de collision par l'intermédiaire de deux sources : le canon à électrons qui génère le faisceau d'électrons incident, d'une part, et la source de gaz à étudier, d'autre part.

a- Source de gaz

Le jet de gaz est produit par expansion à travers un fin capillaire (ou buse) métallique de 0.2 mm de diamètre interne et de 8 mm de longueur. Cette buse est isolée électriquement du reste de l'appareil ce qui permet de mesurer l'intensité du courant captée, mesure qui détermine la position du faisceau par rapport à la buse. La position de la buse pourra être ajustée de l'extérieur pour coïncider avec l'axe de rotation du roulement à billes supportant l'analyseur. La buse est positionnée à environ 1 mm au dessus du faisceau d'électrons. Ce choix a été fait pour maximiser au mieux la densité du gaz dans la zone de collision tout en minimisant le plus possible la diffusion du faisceau par le métal de la buse. Ainsi réglé, le volume de collision est estimé être de l'ordre du mm^3 .

b- Source d'électrons

Le canon à électrons actuel a été conçu par Ilham Taouil au cours de son travail de thèse [Taouil, 2000]. Ce canon, schématisé sur la figure 2, produit un faisceau d'électrons bien focalisé pour une gamme d'énergie allant de ~ 400 eV à 2000 eV. Il est constitué de cinq parties :

- un filament en tungstène, qui émet les électrons par effet Joule. Il est identique à ceux utilisés en microscopie électronique, plié en forme d'épingle à cheveux sur laquelle est déposée une très fine pointe de 'diamètre' $3/10$ mm. Cette pointe permet de mieux localiser l'émission des électrons et ainsi d'obtenir une source ponctuelle. Le filament est porté à la haute tension négative d'accélération des électrons.

- une électrode, appelée Wehnelt, munie d'un diaphragme de 2 mm de diamètre et portée à un potentiel plus négatif que celui du filament. Le réglage de ce potentiel fait varier le débit et la concentration des électrons émis par le filament. En effet, le potentiel de cette électrode permet d'optimiser la trajectoire des électrons émis par le filament et par conséquent, minimise la dispersion angulaire du faisceau. La forme conique et la taille du diaphragme de l'électrode sont choisies de manière à réduire autant que possible la dispersion angulaire du faisceau d'électrons. Un fonctionnement optimal est obtenu lorsque la pointe du filament est disposée au ras du diaphragme (Figure 2.2).

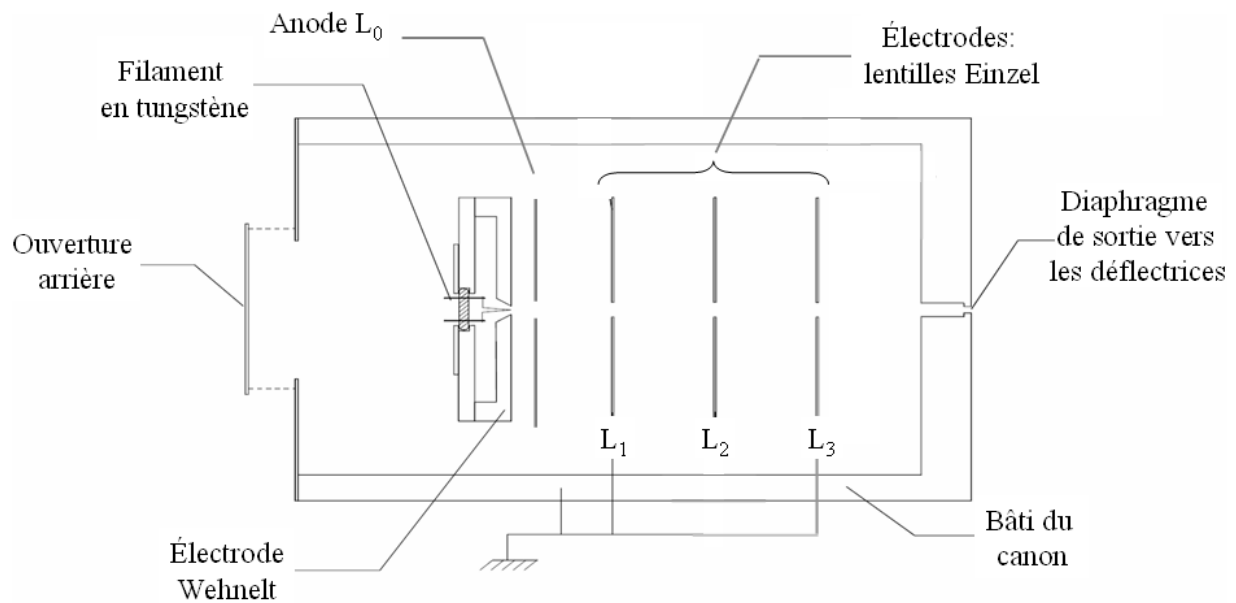


Figure 2.2 : Schéma du canon à électrons.

- une anode, notée L_0 , portée à la masse et qui sert à accélérer les électrons.
- une lentille électrostatique, pour le réglage de la focalisation du faisceau d'électrons.

Elle est formée de trois électrodes possédant une ouverture centrale de 3 mm de diamètre. Deux électrodes (L_1 et L_3) de potentiel nul sont disposées symétriquement de part et d'autre d'une électrode (L_2) portée à un potentiel négatif réglable.

- deux paires de plaques déflectrices (non représentées sur la figure), formées de quatre électrodes planes et orthogonales deux à deux. Cet ensemble sert à déplacer le faisceau horizontalement et verticalement pour optimiser son centrage sur l'axe du jet de gaz. Ces déplacements permettent aussi de mesurer la forme du faisceau : typiquement, c'est une gaussienne, dont la largeur à mi hauteur définit le 'diamètre' du faisceau, de l'ordre de 1 mm.

Les électrons projectiles qui n'ont pas subi des collisions sont recueillis dans une cage de Faraday qu'on appelle 'beam stop' (BS) et qui a un double rôle : elle piège les électrons du faisceau incident en minimisant leur rétrodiffusion dans l'enceinte, d'une part, et elle sert à contrôler l'intensité du courant électronique incident, d'autre part. Enfin, le BS permet aussi de connaître la position du faisceau par l'intermédiaire de la mesure du courant recueilli à travers un petit diaphragme, situé dans le BS, appelé 'pin hole' (PH), de 0.1 mm de diamètre. La mesure des courants des électrons collectés sur le 'PH' (I_{PH}) et sur le BS (I_{BS}) est indispensable pour le diagnostic du faisceau dans la chambre de collision. En particulier, pour qu'un faisceau soit le plus fin (de l'ordre du mm) et le plus parallèle possible (pour les distributions angulaires), il faut maximiser le rapport I_{PH}/I_{BS} .

2.3 Analyseurs toroïdaux

L'analyse et la détection en énergie des électrons diffusés sont assurées par le nouvel analyseur toroïdal et celles des éjectés par le double analyseur toroïdal.

2.3.1 Double analyseur toroïdal

a- Description

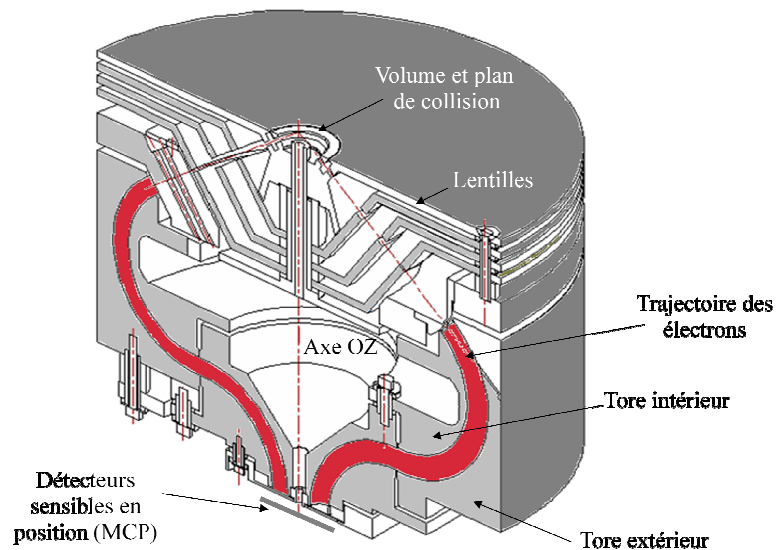


Figure 2.3 : Schéma en coupe d'un analyseur toroïdal (extrait de l'article de Miron *et al*, 1997).

Le schéma 2.3 montre un analyseur toroïdal simple décrit par [Miron *et al*, 1997] et couvrant la totalité 2π de l'angle polaire autour de l'axe vertical Oz. Cet analyseur est constitué de deux secteurs toriques portés à des potentiels différents. Un champ électrique règne alors entre ces deux électrodes. Ce champ ne laisse passer que les électrons issus du centre de collision et qui ont une énergie bien spécifique, eV_p , dite énergie de passage. L'inconvénient d'un tel 'analyseur 2π ' est qu'il ne peut analyser que des électrons ayant une même énergie.

Pour remédier à ce problème, l'équipe a eu l'idée en 1995 [El Marji, 1996] de scinder cet analyseur en deux parties identiques, suivant le plan vertical passant par l'axe de rotation Oz, puis de faire tourner l'une de ces moitiés de 180° 'vers le haut' (figure 2.3). Deux analyseurs indépendants (nommés B et C) sont alors obtenus (à droite et à gauche de la direction

incidente) avec l'avantage de la détection de deux électrons d'énergie différente puisque nous pouvons paramétrer séparément chacun de ces analyseurs.

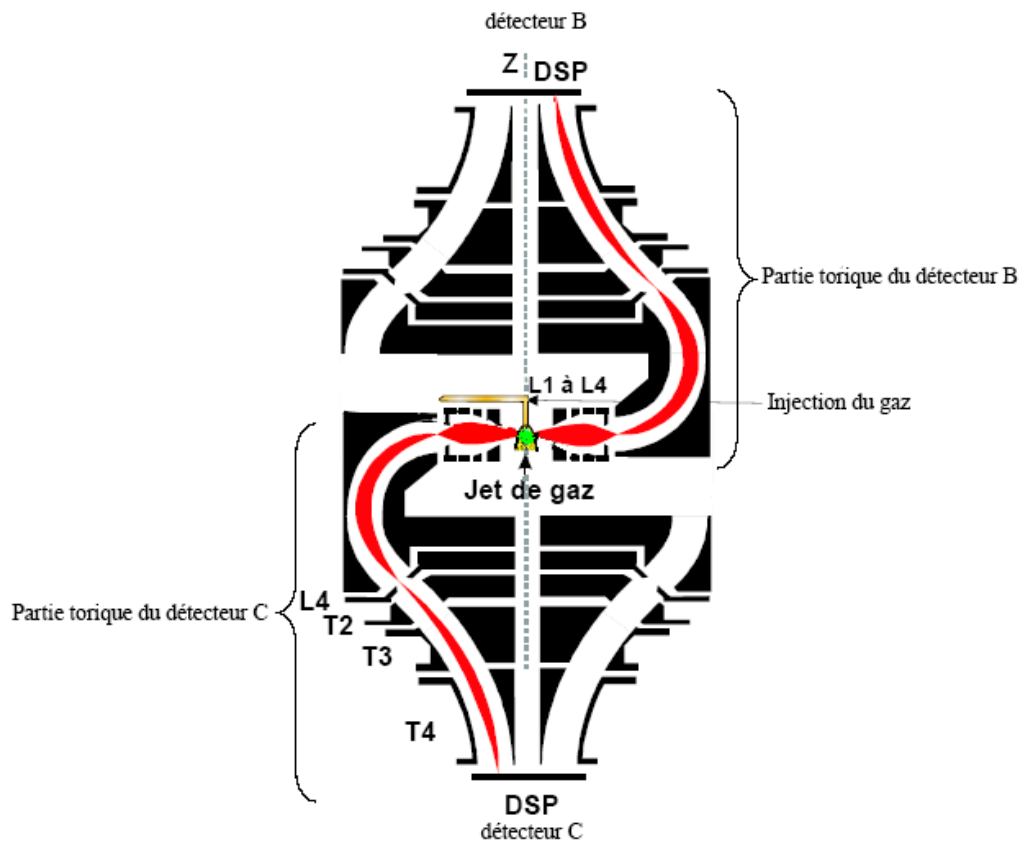


Figure 2.4 : Schéma simplifié du double analyseur des électrons éjectés lents.

Les deux analyseurs toroïdaux sont disposés selon une configuration en S où les électrons sont défléchis soit vers le haut soit vers le bas par rapport au plan de collision. Autrement dit, chaque analyseur sélectionne en angle et en énergie les électrons éjectés, respectivement dans les deux demi-plans de collision, de part et d'autre de l'électron incident. Entre le volume de collision et l'entrée de chaque analyseur toroïdal, est intercalée une lentille formée de quatre éléments ($L_1 - L_4$). Ce système optique est associé d'une manière identique et symétrique par rapport à la direction du faisceau incident, à chacun des deux analyseurs toroïdaux. Dans nos expériences, ce système est utilisé pour accélérer ou décélérer (selon les besoins de l'expérience) les électrons éjectés. Les éléments L_1 - L_3 sont portés à la masse pour maintenir un champ électrique uniforme et nul autour du centre de collision, tandis que l'élément L_4 , fente d'entrée du tore, est soumise à une tension V_{L4} positive ou négative qui détermine l'énergie de passage des électrons dans l'analyseur :

$$E_p = E_{b,c} + eV_{L4}$$

Grâce aux simulations sur Simion¹, et pour chaque énergie, les différentes tensions à appliquer sur chaque tore, y compris la tension V_{L4} sont déterminées pour focaliser au mieux le faisceau d'électrons. Ces valeurs de potentiel sont précisées et affinées lors de chaque expérience.

b- Propriétés de focalisation

La figure 2.5 représente une coupe verticale d'un schéma simplifié de l'analyseur toroïdal, ce qui permet de définir les paramètres principaux. Nous nous limitons dans cette partie à donner quelques formules de base pour un analyseur toroïdal puisque l'étude détaillée d'un tel spectromètre est donnée dans [Leckey *et al*, 1985] et reprise dans [El Marji, 1996], [Catoire, 2006] et [Lower *et al*, 2007].

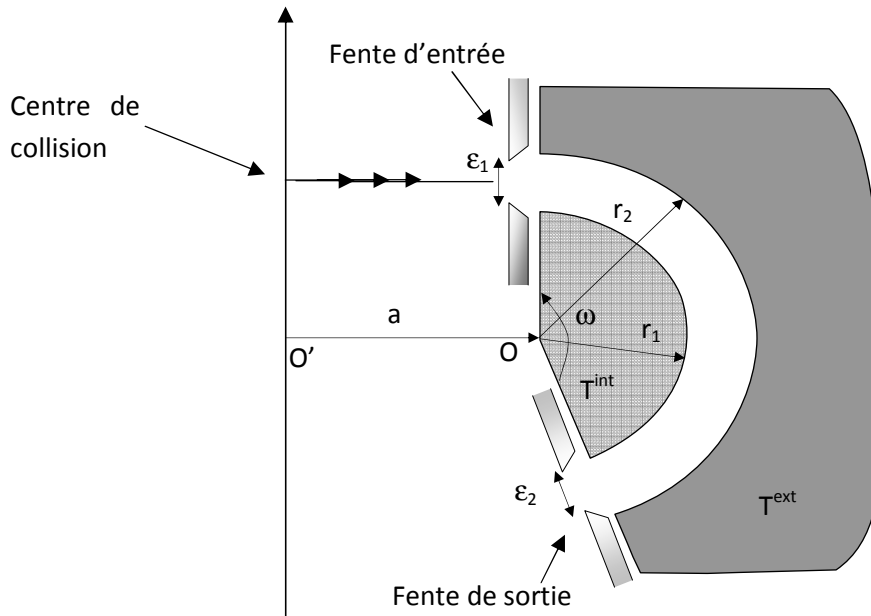


Figure 2.5 : Coupe verticale de l'analyseur toroïdal qui définit les paramètres principaux.

Si nous appliquons une différence de potentiel $\Delta V = V_2 - V_1$ entre l'électrode intérieure de rayon r_1 et l'électrode extérieure de rayon r_2 , le champ électrique s'exprimera par :

$$E_r(r, \omega) = -\Delta V \cdot a \cdot \left\{ l_n \left[\frac{r_2(a + r_1 \sin \omega)}{r_2(a + r_2 \sin \omega)} \right] \cdot b(a + b \sin \omega) \right\}^{-1}$$

¹ Simion est un logiciel principalement utilisé pour le calcul des champs électriques et les trajectoires des particules chargées se déplaçant dans un champ électrique, une fois fixée la configuration géométrique des électrodes.

$$\text{avec } b = \frac{r_1 + r_2}{2}$$

Pour des électrons non relativistes, de charge e et d'énergie cinétique U égale à l'énergie eV_p de passage dans l'analyseur, nous avons la relation suivante :

$$\frac{1}{2}mv^2 = U = eV_p$$

Et, comme la trajectoire des électrons correspond au cercle central de rayon b , nous aurons :

$$eE_b = \frac{mv^2}{b} = \frac{2U}{b} = \frac{2eV_p}{b}$$

Nous obtenons l'équation :

$$V(r) = \frac{2V_p}{\pi a} (\pi a + 2b) \ln \left[\frac{b(2r + \pi a)}{r(2b + \pi a)} \right]$$

qui donne la polarisation des deux tores, intérieur pour $r=r_1$ (qu'on appelle dans la suite $T_{1\text{int}}$) et extérieur pour $r=r_2$ (qu'on appelle dans la suite $T_{1\text{ext}}$).

Nous rappelons que les paramètres géométriques de notre double tore actuel sont : $a = 60$ mm, $b = 75$ mm, $r_1 = 60$ mm et $r_2 = 90$ mm. En pratique, les valeurs des potentiels calculées $T_{1\text{int}}$ et $T_{1\text{ext}}$ sont ajustées en fonction de l'énergie analysée afin d'assurer une bonne focalisation sur le détecteur.

c- Paramètres de focalisation

La figure 2.5 montre que les analyseurs toroïdaux ont des rayons de courbure différents dans le plan radial et axial. Le rapport entre le rayon cylindrique, a , et celui sphérique, b , exprime cette différence de courbure. Le rapport $c = \frac{a}{b}$ caractérise les différents cas d'analyseurs. En effet, on peut retrouver les deux cas limites bien connus :

(i) Si c tend vers l'infini, la possibilité importante est lorsque :

- a tend vers l'infini et b fini non nul : nous avons alors deux cylindres concentriques infiniment longs suivant Z , c'est-à-dire un analyseur cylindrique.

(ii) Si c tend vers zéro, ce qui peut être réalisé lorsque :

- $a = 0$ et b fini non nul : alors O et O' sont confondus et il reste deux sphères concentriques, ce qui correspond à un analyseur sphérique.

L'analyseur toroïdal est donc une généralisation de ces deux cas limites.

D'après une analyse détaillée faite par Toffoletto et ses collaborateurs [Toffoletto *et al*, 1985], le rapport c doit vérifier aussi la relation suivante :

$$\sin(p\omega) = 0 \quad \text{avec} \quad p = \sqrt{\frac{2(c\pi + 1)}{c\pi + 2}}$$

où ω est l'angle du secteur torique, illustré sur la figure 2.5.

La valeur de ω sera alors fixée une fois que les valeurs de a et b sont déterminées. En effet, la figure 2.6 montre le rapport $c = a/b$ en fonction de ω : pour $\omega = 180^\circ$ le rapport c vaut 0, ceci correspond à l'analyseur sphérique ; pour $\omega = 127^\circ$ le paramètre c tend vers l'infini, alors c correspond à l'analyseur cylindrique.

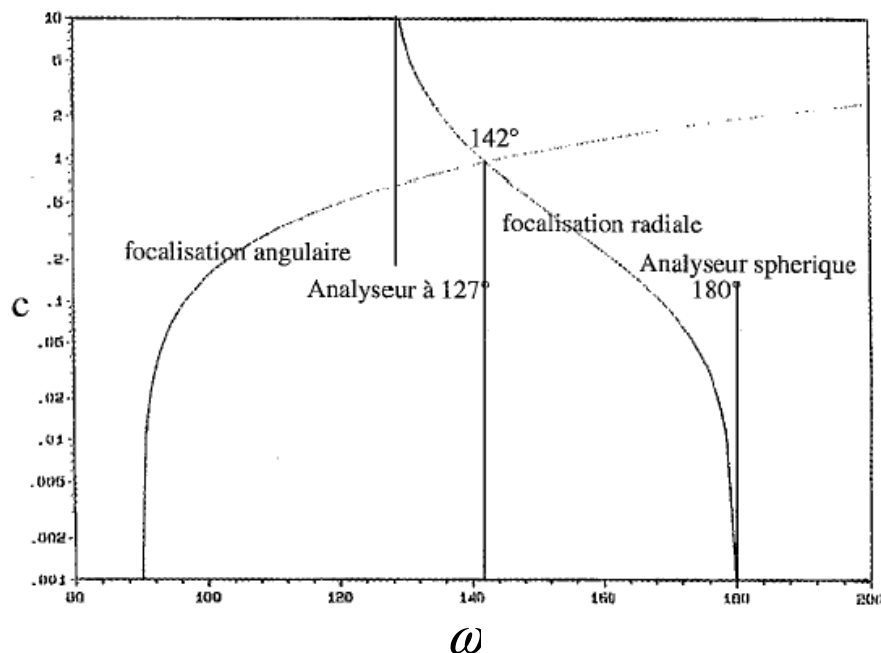


Figure 2.6 : Variation du paramètre de focalisation radiale et axiale, c en fonction de l'angle ω .

Dans notre cas où $a = 60$ mm et $b = 75$ mm, c prend la valeur 0,8 ce qui donne un angle de secteur torique de 142° . Ces valeurs ont été fixées pour répondre à nos besoins tant du point de vue de la focalisation qu'en dimension de l'analyseur toroïdal. Un tel spectromètre doit avoir une bonne focalisation aussi bien suivant le plan radial que suivant le plan axial.

d- Dispersion énergétique et angulaire

La résolution radiale correspond en fait à la résolution en énergie. Un point important concernant alors la géométrie torique, est qu'un objet ponctuel en entrée de cet analyseur redonne une image ponctuelle en sortie. Déterminer donc cette grandeur revient en effet à trouver la relation entre l'objet (volume de collision) qui est situé à l'entrée de l'analyseur et

son image se trouvant à la sortie. La dispersion en énergie D d'un analyseur toroïdal est comprise entre 1 et 2. Elle est donnée par la relation [Wollnick, 1967] :

$$D = \frac{1 - \cos(p\omega)}{p^2}$$

avec $p = \sqrt{\frac{2(c\pi + 1)}{c\pi + 2}}$ pour un analyseur de type toroïdal.

Tenant compte de nos paramètres, la dispersion énergétique de notre analyseur prend alors la valeur 1,28.

A son tour, la résolution axiale correspond à la résolution angulaire. D'après le même principe que pour la résolution énergétique, la résolution angulaire est déterminée en trouvant la relation entre la 'taille' du volume de collision et celle de l'image à la sortie de l'analyseur [Smeek *et al*, 1982].

e- Résolution en énergie

La résolution en énergie pour n'importe quel type d'analyseur à déviation électrostatique est donnée par [Roy *et al*, 1990]:

$$\frac{\Delta E}{E} = \frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{D.b} + K\alpha^2$$

Dans cette expression, $\varepsilon_{1,2}$ correspondent à l'ouverture de la fente d'entrée et de celle de sortie de l'analyseur, K est une constante qui dépend de la nature du tore ($K = 0,6$ pour notre analyseur toroïdal), α est le demi angle d'acceptance à l'entrée de l'analyseur, D représente la dispersion en énergie (voir paragraphe précédent) et b est le rayon moyen défini dans la figure 2.5 ($b = \frac{r_1 + r_2}{2}$). La résolution relative dépend donc directement de la valeur de $\varepsilon_{1,2}$: pour une

ouverture de fente de 1mm, $\frac{\Delta E}{E} = 1\%$. Dans le cas de notre double analyseur toroïdal, l'ouverture des fentes d'entrée et de sortie est égale à 2 mm donc la résolution relative en énergie vaut :

$$\frac{\Delta E}{E} = 2,2\%$$

2.3.2 Détecteur sensible en position

Les informations sur la position et le temps d'arrivée de chaque particule sont nécessaires à notre étude. Elles sont fournies par un élément multiplicateur du signal produit à chaque impact d'électrons, appelé MCP (Multi-Channel Plate) couplé à une information sur la position de ces électrons produite par une anode résistive. L'ensemble forme un détecteur sensible en position.

a- Galettes à micro-canaux (MCP)

Une galette MCP est un assemblage de tubes ou canaux de diamètre $12,5 \mu\text{m}$ chacun et d'une longueur de $0,48 \text{ mm}$ (figure 2.7). Le nombre de ces canaux est compris entre 10^6 et 10^7 . La distance entre les canaux est de $15 \mu\text{m}$. La paroi interne des ces canaux est faite d'un matériau à fort pouvoir d'émission secondaire. Ainsi un électron incident produit plusieurs électrons après un choc sur cette paroi. Les tubes qui constituent le MCP étant inclinés d'environ 8° par rapport à la normale, ces électrons pourront ensuite effectuer la même opération d'amplification tout au long de leur traversée du tube.

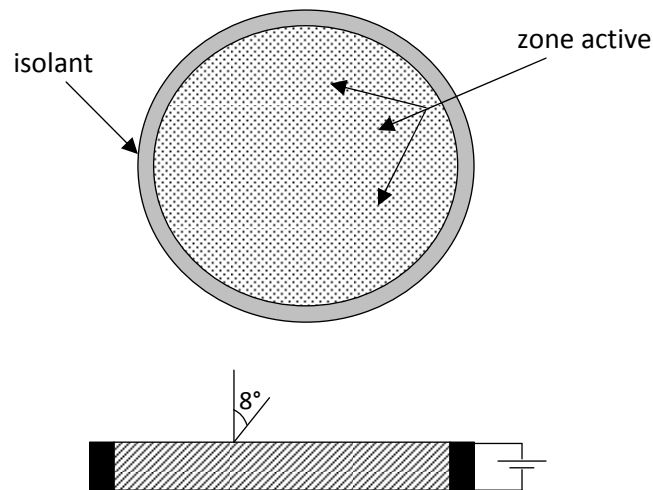


Figure 2.7 : Une galette MCP vue sous deux coupes.

Chacun de nos détecteurs est constitué par un assemblage de trois de ces galettes. Le gain de chaque galette est de $\sim 10^3$ - 10^4 ce qui fait approximativement un gain de $\sim 10^8$ pour chaque détecteur, compte tenu des phénomènes de saturation. Cette gerbe d'électrons arrive enfin sur l'anode résistive, qui va permettre d'en mesurer la position en déterminant les coordonnées de chaque impact.

b- Anode résistive et signaux de position

L'anode résistive utilisée pour chacun de nos 3 détecteurs est de type 'Quantar Technology'. C'est un élément purement résistif à bords en arc de cercle (figure 2.8). La mesure de la position d'un impact électronique sur une telle anode se fait en mesurant les charges Q_a , Q_b , Q_c et Q_d sur les quatre coins de l'anode. En effet, la charge reçue en chacun des coins est proportionnelle à la distance entre le coin et le point d'impact.

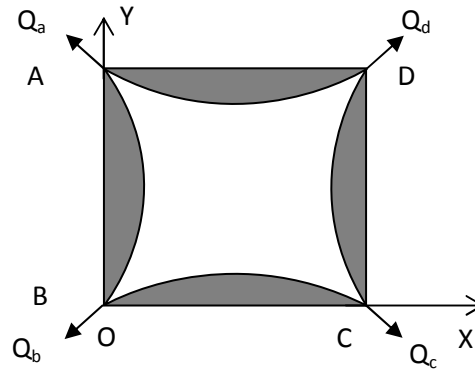


Figure 2.8 : Schéma simplifié d'une anode résistive.

Cette mesure nous permet de connaître les coordonnées cartésiennes de l'impact de chaque électron. En effet, si Q est la charge totale collectée, et Q_a , Q_b , Q_c et Q_d sont les quatre charges collectées respectivement à chaque coin de l'anode, les relations qui permettent de définir le point d'impact en coordonnées cartésiennes peuvent être écrites sous la forme suivante :

$$X = \frac{Q_c + Q_d}{Q_a + Q_b + Q_c + Q_d} = \frac{Q_c + Q_d}{Q}$$
$$Y = \frac{Q_a + Q_d}{Q_a + Q_b + Q_c + Q_d} = \frac{Q_a + Q_d}{Q}$$

Une étude théorique détaillée du fonctionnement des anodes résistives est donnée dans [Lampton *et al*, 1974, 1979] et dans la thèse de doctorat de [Salgado, 1995].

Les signaux de charge ainsi délivrés, appelés signaux de position, sont traités par une chaîne électronique de détection : ces signaux sont d'abord amplifiés grâce à des préamplificateurs, pour qu'ils puissent être pris en charge par des modules électroniques standard. Les impulsions obtenues sont ensuite acheminées vers des discriminateurs qui sélectionnent seulement celles dont l'amplitude dépasse un certain niveau de tension. Les impulsions sont alors prêtes à être dirigées vers le système d'acquisition.

c- Signal temps

Ce signal correspond à l'instant d'arrivée des particules issues du volume de collision sur le détecteur. Il est directement mesuré sur la face arrière de la troisième galette du système de détection (figure 2.9). C'est un signal positif rapide, de durée à la base $\sim 5\text{ns}$. Etant flottant à la haute tension d'alimentation des galettes ($\sim 3\text{ kV}$), il est découplé de cette haute tension par deux condensateurs de capacité 1 nF chacun et deux résistances ($4,7\text{ k}\Omega$ et $51\text{ k}\Omega$) placées en parallèle. Ce signal est alors transmis sous basse tension à l'extérieur de l'enceinte à vide. Il est rendu négatif grâce à un inverseur avant d'être amplifié par un préamplificateur rapide pour être dirigé vers le système d'acquisition.

d- Montage du détecteur

Le système de détection associé à chaque analyseur toroïdal est composé essentiellement de trois galettes à micro-canaux montées en cascade de manière à ce que le chemin d'amplification soit en 'zig-zag', couplées à une anode résistive à deux dimensions (figure 2.9). La face d'entrée de la première galette est portée, grâce à une couronne polarisée, à un potentiel positif compris entre 50 et 250 V afin que les électrons incidents tombent perpendiculairement sur la surface avec une énergie cinétique optimale pour assurer une bonne efficacité de détection.

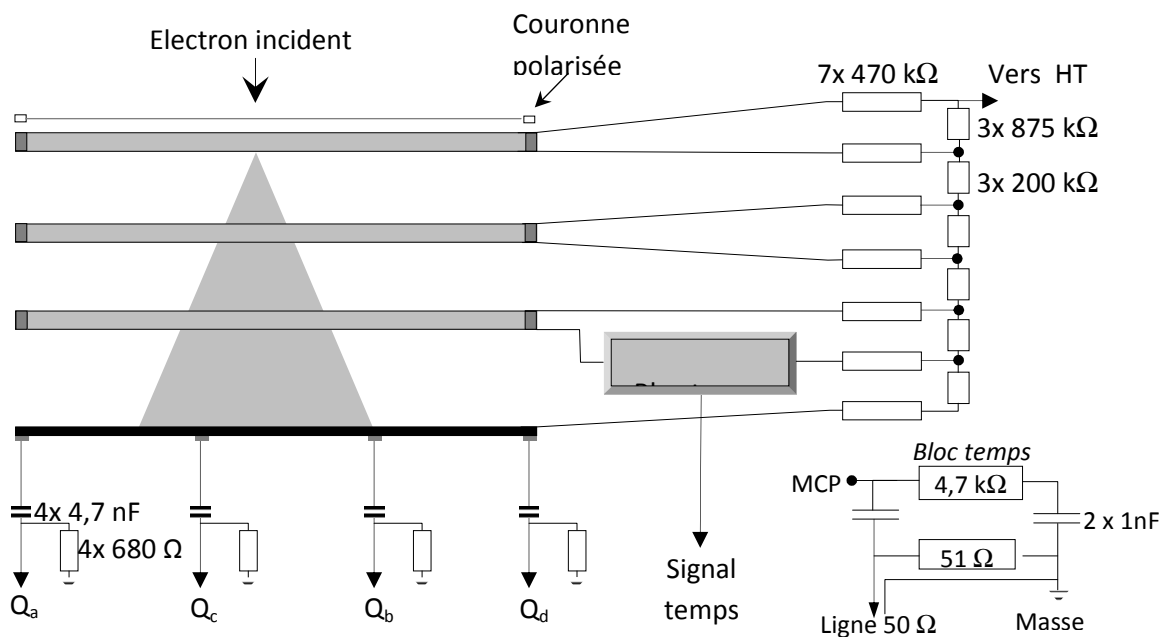


Figure 2.9 : Schéma simplifié du montage du détecteur sensible en position.

Une haute tension (V_{HT}) est appliquée entre la face d'entrée de la première galette et l'anode résistive. Elle est répartie sur les trois galettes grâce à un pont diviseur. Elle peut varier entre 2500 et 3200 V, suivant le vieillissement des galettes. Un effet de détérioration du gain dû en partie à la pollution (huile, solvant,...) de la paroi des canaux, ou à un effet de 'fatigue' du matériau semi-conducteur qui se traduit par une baisse de son coefficient d'émission secondaire, pourra être compensé, dans une certaine limite, par une augmentation de la haute tension de polarisation.

Les quatre signaux de charge ainsi que le signal temps issus de chacun des détecteurs sensibles en position de notre spectromètre vont être mis en forme par une chaîne électronique, puis corrélés par un système dit 'cube de corrélation', et enfin lus par un ordinateur et stockés en mémoire.

2.3.3 Nouvel analyseur toroïdal pour les électrons diffusés

L'analyse en énergie des électrons diffusés rapides est assurée par un nouvel analyseur toroïdal (noté analyseur A). Dans ce paragraphe, nous présentons un bref aperçu global des caractéristiques de cet analyseur dont la mise au point a été faite en 2005 par Fabrice Catoire lors de son travail de thèse. Une étude plus détaillée est donc donnée dans [Catoire, 2006] ainsi que dans [Catoire *et al*, 2007].

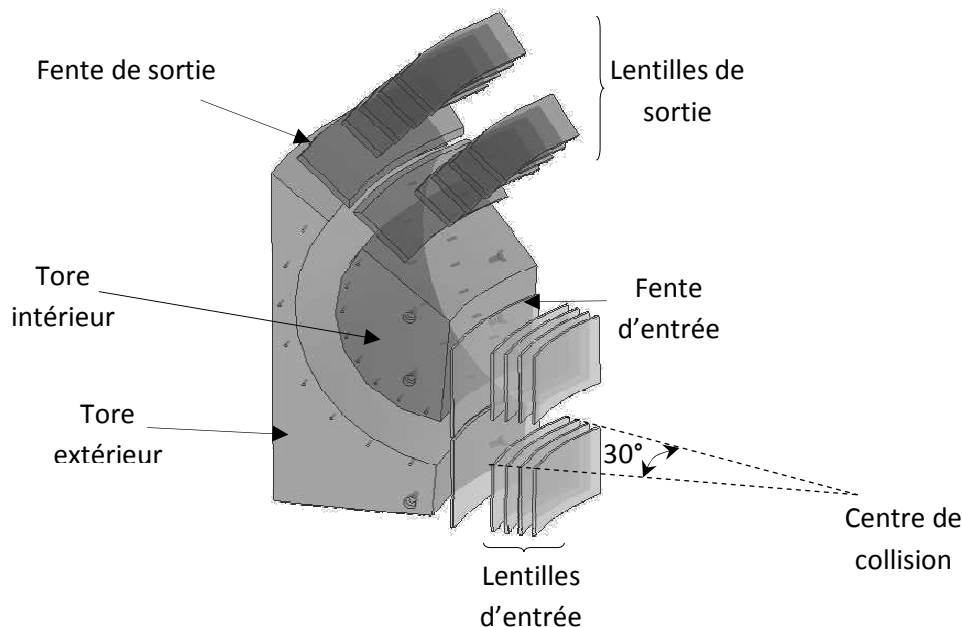


Figure 2.10 : Schéma simplifié de l'analyseur toroïdal pour les électrons diffusés.

Il s'agit d'un analyseur à géométrie toroïdale composé de quatre parties. Les lentilles d'entrée et de sortie permettent de focaliser le faisceau des électrons diffusés du volume de collision à

l'entrée et à la sortie de l'analyseur (vers le détecteur A). La partie torique est formée de deux électrodes qui sélectionnent en énergie les électrons ($r_{\text{int}} = 90$ mm, $r_{\text{ext}} = 130$ mm). L'angle formé par ces électrodes est de 127° , (voir 2.3.1 partie a). L'ensemble, de 50cm de hauteur, est monté sur un support ajustable de l'extérieur. A son entrée, l'analyseur possède une ouverture angulaire utile de 30° . Toutefois, en raison des effets de bord dus aux perturbations du champ électrique créé à la troncature de ses électrodes, l'acceptance angulaire utile de l'analyseur est réduite à 20° .

Toutes les tensions appliquées aux différentes lentilles de l'analyseur ainsi qu'aux deux électrodes toroïdales sont ajoutées à un potentiel flottant correspondant à la tension de décélération (V_{dec}). L'énergie E_a de l'électron diffusé est donc donnée par :

$$E_a = E_{\text{pass}} - eV_{\text{dec}}$$

où E_{pass} est l'énergie de passage des électrons diffusés entre les deux électrodes de l'analyseur. Cette procédure nous permet de changer facilement l'énergie E_a d'une valeur à une autre puisque le changement de potentiel se fait de telle sorte que la différence de potentiel entre les électrodes intérieures et extérieures est conservée. Seule la valeur moyenne du potentiel est modifiée (qui est représentative de l'énergie de passage). Ce qui n'est pas le cas du double analyseur toroïdal : un changement de l'énergie d'analyse $E_{b/c}$ nécessite un changement de tous les potentiels.

a- Résolution énergétique

La résolution en énergie de ce tore est déterminée à partir du pic de diffusion élastique. A cet effet, le canon à électrons est réglé pour une énergie de 500 eV, l'énergie d'analyse du tore. Nous avons fixé aussi l'énergie de passage à 205 eV. La mesure du pic élastique consiste à faire varier la tension de décélération autour de sa valeur nominale 295 V. La courbe mesurée est une gaussienne centrée autour de cette valeur nominale et de largeur à mi-hauteur $\sim 3,9$ eV. La résolution énergétique du tore est donc de $\sim 3,9$ eV qui correspond bien à la valeur calculée par l'application numérique déjà vue dans la partie (e) du paragraphe 2.3.1, calcul qui ne tient compte que des paramètres géométriques.

Ce résultat est confirmé par une mesure du pic inélastique de simple ionisation ($e, 2e$) sur He ou Ar pour une énergie des électrons éjectés de 205 eV, ces électrons étant analysés par le double tore b/c ($E_0 = 730$ eV et 721 eV respectivement pour He et Ar). L'énergie des électrons diffusés étant toujours fixée à 500 eV et l'énergie de passage à 205 eV, on enregistre

le spectre énergétique (e,2e) c'est-à-dire la variation de la fréquence de coïncidence vraie en fonction de l'énergie des électrons diffusés (ou, de manière équivalente, des électrons incidents) en intégrant sur tout le domaine angulaire accessible pour chacun de ces tores. La courbe obtenue pour l'He est la suivante (communément appelée spectre d'énergie de liaison):

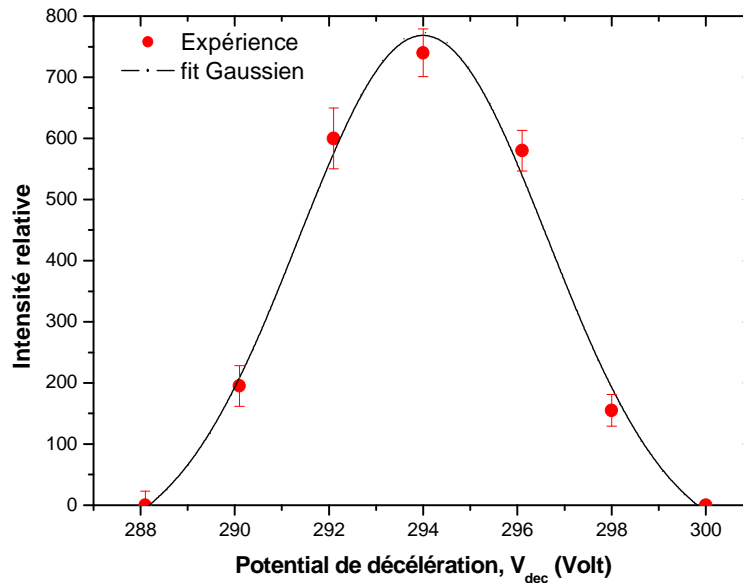


Figure 2.11 : Tracé du taux de coïncidences vraies en fonction de la tension de décélération

C'est une gaussienne de valeur centrale 294 V et de largeur à mi-hauteur $\Delta E = \sim 5,6$ eV qui est le résultat de la convolution des réponses énergétiques des deux tores a et b/c, (nous négligeons la dispersion en énergie du faisceau incident, $\sim 0,5$ à 1 eV), soit :

$$\Delta E^2 = \Delta E_a^2 + \Delta E_{b/c}^2$$

Ceci est en accord avec notre estimation $\Delta E_a = \Delta E_{b/c} = \sim 3,9$ eV. Notons cependant que cette valeur mesurée $\Delta E = 5,6$ eV n'est pas la résolution énergétique en coïncidence. Cette dernière s'écrit, comme l'a montré [Lahmam-Bennani, 1985] :

$$\Delta E_{\text{coïn}}^{-2} = \Delta E_a^{-2} + \Delta E_{b/c}^{-2}$$

et vaut donc dans les conditions discutées ici $\Delta E_{\text{coïn}} = \pm 1,4$ eV.

b- Résolution angulaire

La résolution angulaire du nouvel analyseur est déterminée en plaçant à l'entrée de l'analyseur une plaque percée de deux fentes aux angles -6° et $+6^\circ$. La largeur de chacune des fentes (1 mm) correspond à une largeur angulaire de 1° . La résolution angulaire attendue sera une distribution du type gaussienne résultant d'un produit de convolution entre la largeur de la fente et la réponse propre de l'appareil (supposée gaussienne). En fait, cette dernière constitue le point faible de la performance de notre analyseur puisqu'elle dépend, d'une part, de l'extension spatiale du volume de collision qui n'est pas vraiment un centre ponctuel et, d'autre part, de la contribution du gaz résiduel dans l'enceinte. Un second point allant dans le même sens est le fait que les électrons analysés ont une énergie de 500 eV alors que l'énergie de passage est de 200 eV. Cette décélération entraîne également une dégradation de la résolution angulaire.

Pour déterminer la résolution angulaire de cet analyseur, nous utilisons les deux fentes citées ci-dessus, placées aux angles $\pm 6^\circ$ et nous analysons les sections efficaces doublement différentielles mesurées sur le détecteur a, qui se présentent sous forme de deux taches correspondant chacune à une des fentes mises à l'entrée. De la détermination du barycentre de chaque tache et de son fit par une gaussienne [Catoire, 2006] et en tenant compte de l'angle d'ouverture de la fente (1°), nous déduisons la résolution angulaire qui correspond à la largeur à mi-hauteur de chaque gaussienne, soit $\Delta\theta_a \sim 3^\circ$.

2.4 Principe des mesures en coïncidence

Brièvement, le principe d'une mesure en coïncidence consiste à déterminer, parmi tous les électrons détectés, ceux qui proviennent de la même collision. Le premier tri s'effectue grâce à l'analyse en énergie et à la détection en position : en effet, après avoir subi la collision, les électrons arrivant sur un détecteur ont obligatoirement traversé un analyseur et ont donc une énergie cinétique bien connue ainsi que la direction de leur trajectoire. Il reste alors à distinguer les électrons corrélés entre eux, c'est-à-dire issus d'une même collision. En négligeant la durée de la collision, ces électrons ont pour propriété commune d'être partis au même instant du centre de collision, ce qui les distingue de tous les autres. Tous les électrons atteignant les détecteurs possèdent une énergie et donc une vitesse bien déterminée, ils parcourent des trajets dont la longueur est aussi constante, le temps (appelé temps de vol) qu'ils prennent pour être détectés à partir du moment où ils sont émis est donc lui aussi une constante. Dans ces conditions, la différence de temps séparant les instants respectifs de

détection d'un groupe d'électrons (deux dans le cas (e,2e) ou trois dans le cas (e,3e)) émis au même instant du centre de collision a une valeur fixe. Notre technique, décrite dans le paragraphe suivant, va consister à mesurer ces différences de temps lorsqu'un signal sera détecté, information à partir de laquelle on pourra déterminer si ces électrons sont corrélés ou non.

2.5 Système d'acquisition

Le système d'acquisition des données, conçu dans le laboratoire principalement par Michel Lecas puis Fabrice Catoire, a pour rôle la mise en forme des signaux délivrés par les trois détecteurs.

Concernant les signaux-temps, nous avons au total, comme décrit précédemment, deux (ou trois) signaux temps issus des deux (ou trois) détecteurs sous forme d'impulsions négatives très rapides. Ces signaux sont de type NIM et d'une largeur à mi-hauteur de l'ordre de 5 ns. A sa sortie, chaque signal déclenche un convertisseur temps-amplitude (TAC : Time to Amplitude Converter). Le TAC permet alors de mesurer le temps séparant deux évènements en délivrant en sortie une impulsion analogique dont l'amplitude est proportionnelle à l'écart de temps séparant les deux signaux 'Start' et 'Stop' appliqués sur ses entrées. Quant aux signaux de charges, ils sont mis en forme par une chaîne constituée d'un préamplificateur de charge et d'un filtre passe-bande qui fournit pour chacun une impulsion de durée 3 μ s dont l'amplitude est proportionnelle à la charge collectée (figure 2.12).

Par exemple, pour une expérience (e,3e) la corrélation entre les trois électrons issus du volume de collision (électron diffusé, rapide, et deux électrons éjectés, lents) se fait via deux TAC, qui sont déclenchés simultanément par le même signal temps provenant de l'un des trois détecteurs (généralement celui du diffusé rapide), et arrêtés si les deux autres électrons sont présents, dans une fenêtre de 200 ns. A la sortie de ces TAC, une impulsion logique est délivrée et envoyée à une porte 'ET'. C'est l'impulsion de sortie de cette porte qui déclenchera tous les systèmes de conversion A/D. Ces derniers sont contrôlés aussi par un séquenceur dont le rôle est d'indiquer au micro ordinateur d'acquisition que le traitement d'un événement par le 'cube de corrélation' est terminé et que les résultats sont prêts à être lus par l'ordinateur.

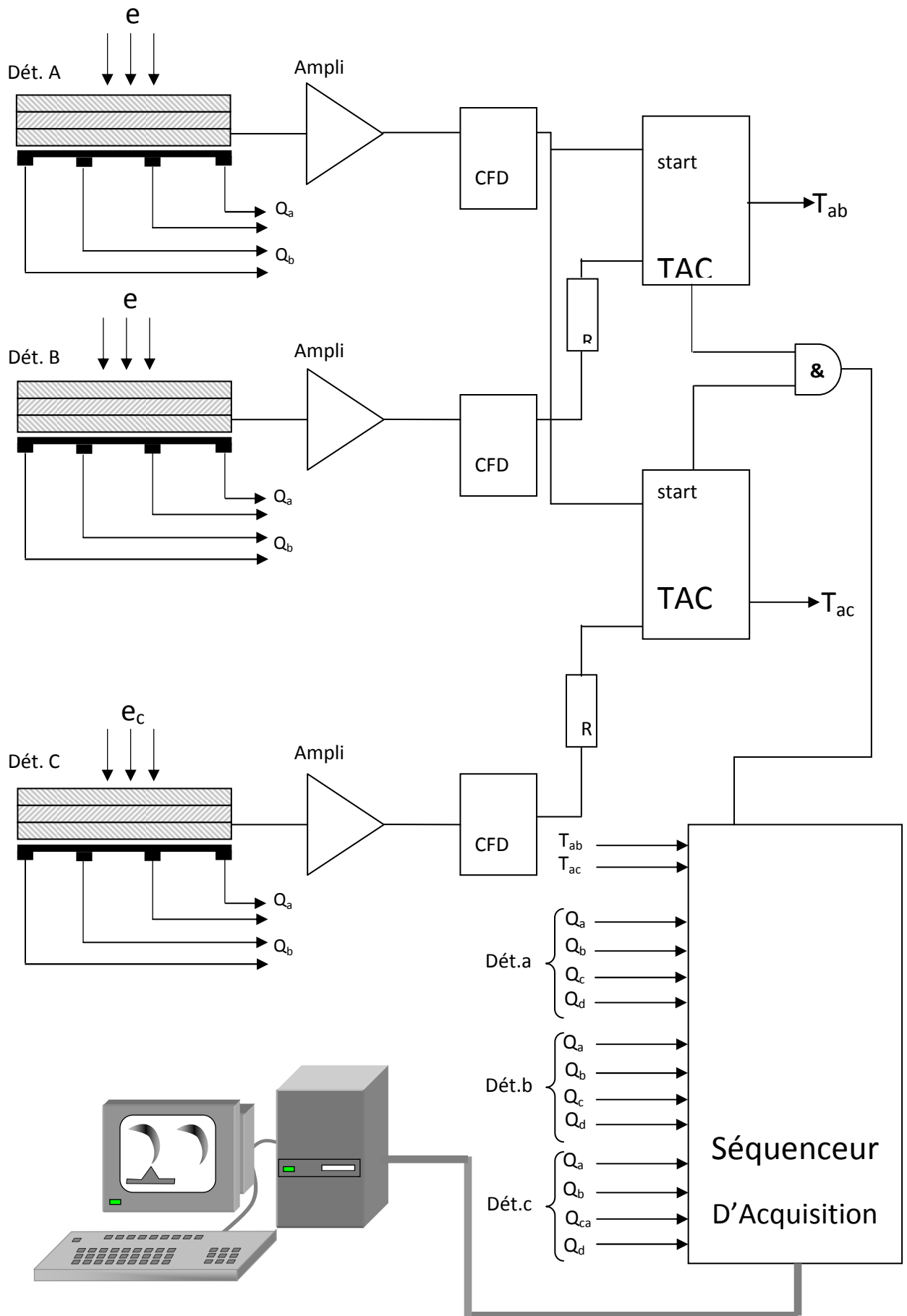


Figure 2.12 : Système électronique d'acquisition de données.

2.6 Technique de mesure

La méthode de coïncidence décrite dans le paragraphe 2.4 constitue une des techniques les plus sensibles qui permettent de détecter les particules ayant participé à un type de collision bien précis. Nous pouvons réaliser trois types différents de mesures en coïncidences. Premièrement, pour les expériences de type (e,2e) de simple ionisation, où les deux électrons finaux sont détectés en coïncidence. Ensuite, pour la double ionisation de type (e,3e) qui consiste à détecter en coïncidence les trois électrons existant dans l'état final. Enfin, le troisième type, intermédiaire, est dit (e,3-1e). Il correspond en fait à une double ionisation mais seulement deux des trois électrons de l'état final sont détectés en coïncidence. Ce type de mesure permet d'augmenter le taux de coïncidence et se fait en un temps d'accumulation nettement moins long que pour des expériences de type (e,3e).

a- Spectre de coïncidence (e,2e)

Lors d'une collision (e,2e) on détecte l'électron diffusé 'rapide' et celui éjecté 'lent' dans l'état final. Le signal produit par le premier sert à déclencher le TAC. Si l'arrivée du deuxième pendant une certaine fenêtre temporelle, valant ici 200 ns, arrête le TAC on a alors une coïncidence. Celle-ci peut correspondre à deux cas distincts :

1- un électron lent non-corrélé à l'électron rapide arrête le TAC par hasard, après un temps t qui peut varier aléatoirement entre 0 et 200 ns. Il s'agit ici d'une fausse coïncidence ou coïncidence accidentelle ou fortuite.

2- l'électron lent, corrélé au rapide, arrête le TAC toujours au même temps t_0 (avec une certaine dispersion statistique), donnant lieu à une coïncidence vraie.

Si aucun électron lent n'arrête le TAC, celui-ci ne délivre aucun signal et est remis à zéro : l'événement ne sera donc pas enregistré.

L'accumulation d'un grand nombre d'évènements pendant une expérience (e,2e) permet de construire un spectre de temps de simple ionisation, analogue à celui représenté dans la figure 2.13. Il est composé de deux contributions, *le bruit* (fausses coïncidences) réparti uniformément sur toute la largeur du spectre, et *le pic de coïncidence* localisé en une certaine région du spectre où sont accumulées les vraies coïncidences. L'origine de l'axe ($t=0$) correspond au déclenchement du TAC. L'axe vertical représente le nombre d'évènements enregistrés pour chaque différence de temps.

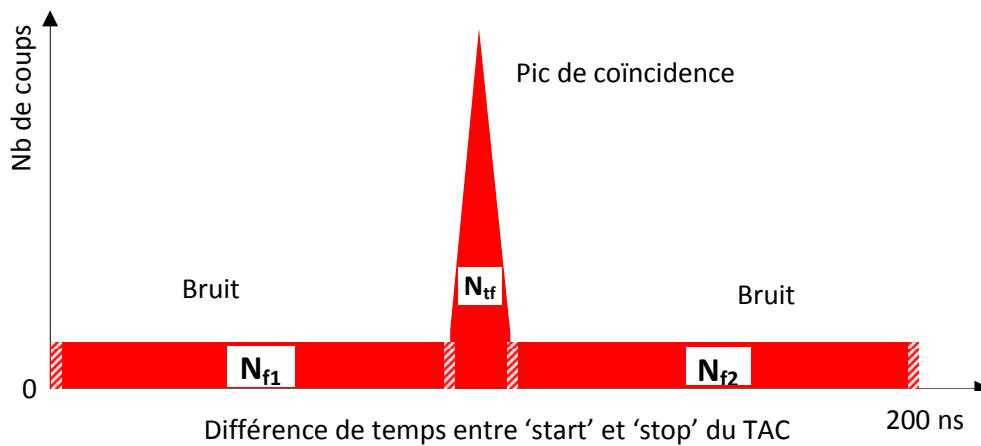
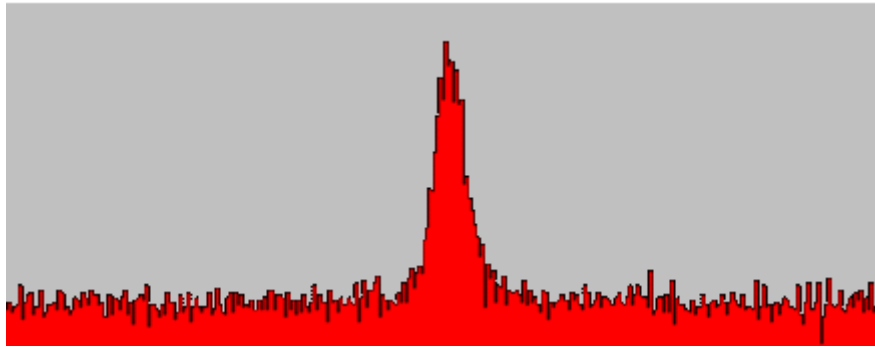


Figure 2.13 : Spectre de double coïncidence. En haut, spectre expérimental ; en bas, schéma simplifié. Les indices *t* et *f* correspondent à 'true' et 'false' en anglais.

Une bonne qualité du spectre peut se traduire par les trois caractéristiques suivantes : un grand rapport coïncidences vraies sur fortuites, communément désigné par signal sur bruit (S/B), un pic de coïncidence étroit et un bruit déterminé avec une bonne statistique en utilisant le plus grand nombre possible de canaux.

La précision statistique (ou incertitude relative en %) sur le nombre de coïncidences vraies (N_t) enregistrées pendant la durée de l'expérience est reliée à la déviation standard σ sur N_t par [Lahmam-Bennani *et al*, 1985] :

$$\left(\frac{\sigma}{N_t}\right)^2 = \frac{N_{tf} + r^2 N_f}{N_t^2}$$

N_f représente le nombre total de coïncidences fausses hors du pic, $N_f = N_{f1} + N_{f2}$, comptées dans les N canaux de la zone extérieure au pic, N_{tf} est le nombre de coïncidences totales (vraies et fausses) dans le pic (cf. *figure 2.13*) et N_t est le nombre total de coïncidences vraies comptées dans les n canaux de la zone du pic. Ce dernier est donné par :

$$N_t = N_{f_f} - rN_f \quad \text{avec} \quad r = \frac{n}{N}$$

Mais comment influent concrètement les paramètres expérimentaux sur la qualité du spectre de coïncidence ? En effet, l'expression de la déviation standard σ du nombre de coïncidences ci-dessus peut être réécrite de manière à faire apparaître ces paramètres. Si f_a et f_b sont les fréquences (ou taux) d'arrivée des électrons diffusés et éjectés respectivement sur chacun des détecteurs a et b, f_t la fréquence des coïncidences vraies, τ l'intervalle de temps correspondant à un canal de spectre et T le temps d'accumulation des événements durant l'expérience, on a :

$$N_t = Tf_t \quad \text{et} \quad N_f = Tf_a f_b N \tau$$

D'où :

$$\left(\frac{\sigma}{N_t} \right)^2 = \frac{1}{N_t} + r(1+r) \frac{N_f}{N_t^2} = \frac{1}{Tf_t} + (1+r) \frac{n\tau}{T} \frac{f_a f_b}{f_t^2}$$

Or, les fréquences f_a , f_b et f_t sont proportionnelles au courant i d'électrons du faisceau incident (plus exactement au produit $i \times n_g$ où n_g est la densité du gaz cible. Dans la suite, i désigne ce produit). Nous pouvons donc les mettre sous la forme :

$$f_a = K_a i, \quad f_b = K_b i \quad \text{et} \quad f_t = K_t i$$

où K_a , K_b et K_t sont les facteurs de proportionnalité de f_a , f_b et f_t respectivement.

$\left(\frac{\sigma}{N_t} \right)^2$ pourra alors s'exprimer comme suit :

$$\left(\frac{\sigma}{N_t} \right)^2 = \frac{1}{TK_t i} + (1+r) \frac{n\tau}{T} \frac{K_a K_b}{K_t^2}$$

D'après cette relation, les seuls paramètres qu'on peut ajuster expérimentalement sont le temps d'accumulation T et le 'courant' i . De manière évidente, en augmentant l'intensité du courant on pourra obtenir la même précision statistique σ en un temps plus court (ou, à temps égal, améliorer σ), mais alors il ne faut pas oublier qu'une augmentation de i dégrade le rapport S/B puisqu'il est proportionnel à $1/i$:

$$\frac{N_t}{N_f} = \frac{K_t i}{TN \tau K_a K_b i^2} = \frac{K_t}{TN \tau K_a K_b} \frac{1}{i}$$

En pratique, il y a donc un compromis à faire pour choisir un courant élevé qui améliore σ sans trop dégrader le rapport S/B (en général, $S/B \gg 1$).

b- Spectre de coïncidence (e,3e)

Lors d'une collision (e,3e) on détecte, en coïncidence, l'électron diffusé 'rapide' (noté e_a) et les deux électrons éjectés 'lents' (notés e_b et e_c) dans l'état final.

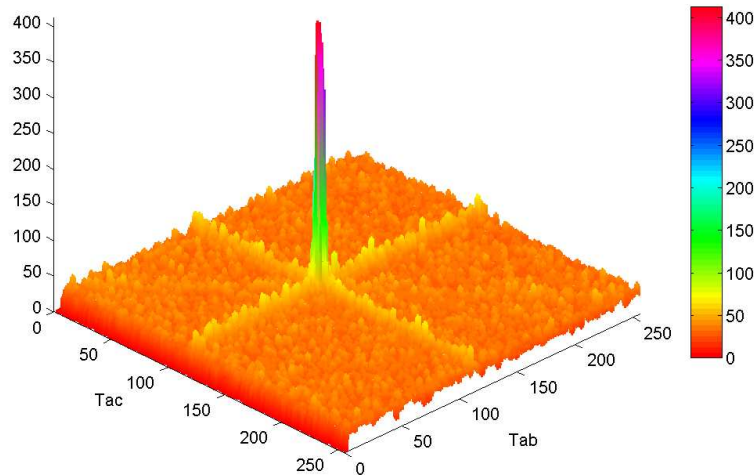


Figure 2.14 (a) : visualisation 3-D d'un spectre de triple coïncidence mesuré.

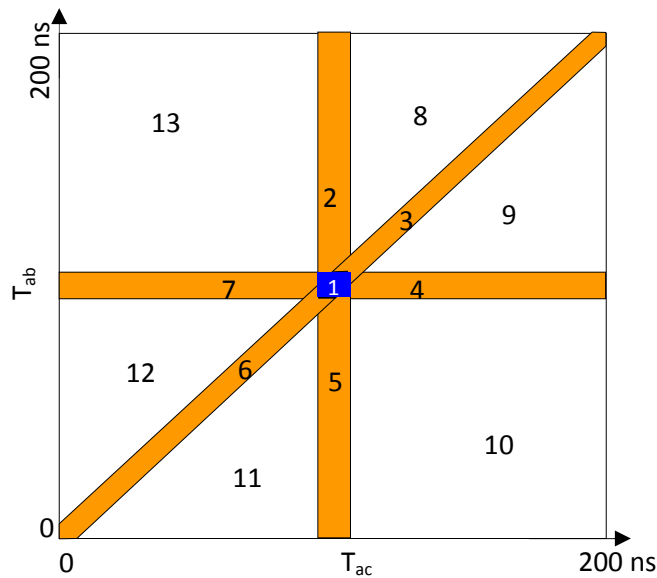


Figure 2.14 (b) : projection 2-D schématique du spectre de temps de triple coïncidence montrant les différentes zones des murs des coïncidences doubles, le pic de triple coïncidence et enfin le bruit de fond uniforme.

Zone 1 : pic de triples coïncidences (n canaux)

Zone 4 et 7 : mur b (N_b canaux)

Zone 2 et 5 : mur c (N_c canaux)

Zone 3 et 6 : mur a (N_a canaux)

Zone 8 à 13 : bruit de fond (N_u canaux)

Fondamentalement, l'acquisition du type (e,3e) suit le même principe que (e,2e), il suffit de détecter trois particules en coïncidence au lieu de deux. La figure 2.14 représente un spectre de triple coïncidence sous deux formes différentes. Deux TAC sont utilisés pour mesurer les temps qui séparent les événements a de b et a de c, notés respectivement T_{ab} et T_{ac} . L'axe Z représente le nombre d'évènements enregistrés pour chaque différence de temps. Le pic au centre correspond à la triple coïncidence signant la double ionisation. Celle-ci est superposée à un fond constitué par quatre contributions différentes. Trois de ces contributions sont des semi-bruits puisqu'elles sont dues à la corrélation vraie de deux électrons, le troisième étant aléatoire, ce qui correspond à la création de trois 'murs' a, b et c désignant la corrélation bc, ac et ab, respectivement. Chacun de ces murs est aussi un signal de double ionisation, qui mesure la section efficace (e,(3-1)e), mais avec une faible efficacité puisqu'elle impose de trouver simultanément un troisième électron à l'intérieur de l'intervalle de temps de 200 ns correspondant à la fenêtre de temps des TAC. La quatrième contribution est totalement accidentelle où les électrons e_a , e_b et e_c ne sont pas corrélés. De la même manière que dans le cas (e,2e), il suffit de soustraire dans le pic de coïncidence, les différentes contributions fortuites pour obtenir le signal vrai de double ionisation.

La qualité du spectre se traduit par la précision statistique ou incertitude relative, σ_T/N_T , sur la valeur du nombre de coïncidences vraies N_T accumulé au bout d'un temps d'accumulation T donné. Une étude détaillée sur ce sujet a été donnée par [Dupré *et al*, 1991]. Nous nous restreindrons ici aux grandes lignes.

Soit N_T le nombre des coïncidences triples vraies enregistrées dans le pic durant le temps d'accumulation (T). La généralisation du raisonnement tenu dans le cas (e,2e) permet d'exprimer N_T comme suit :

$$N_T = N_{TA} - \sum_{K=a,b,c} \frac{n}{N_K} (N_A^K - \frac{N_K}{N_u} N_A^u) - \frac{n}{N_u} N_A^u$$

N_{TA} est le nombre total d'évènements comptés dans les n canaux de la zone du pic (figure 2.14.b), comprenant de vraies et fausses triples coïncidences, N_A^K est le nombre de coïncidences accidentelles enregistrées dans les N_K canaux des murs K (K=a, b ou c), et N_A^u est le nombre total d'évènement accidentels enregistrés dans N_u canaux du bruit de fond. Le second terme de l'équation représente la somme des trois contributions au pic central des coïncidences accidentelles, chacune est calculée comme étant la différence entre l'intensité totale du mur correspondant et le bruit de fond uniforme.

En définissant r_k et r_u comme étant les rapports respectifs $\frac{n}{N_K}$ et $\frac{n}{N_u}$, l'incertitude statistique relative en fonction de N_T est alors la somme quadratique de chacune des ces contributions [Dupré *et al*, 1991] d'où :

$$\frac{\sigma_T}{N_T} = \left(1 + \frac{1}{N_T} \times \sum_{K=a}^c r_k (1 + r_k) N_A^K - 2r_u (1 - r_u) N_A^u \right)^{1/2}$$

En introduisant les paramètres expérimentaux, de la même manière que pour le cas (e,2e), les différentes contributions s'écrivent en fonction de i , du temps T d'accumulation, et des sections efficaces correspondantes, soit :

$$N_T = T \cdot K_T \cdot i, \quad N_A^u = T K_u i^3 \quad \text{et} \quad N_A^k = T K_k i^2 + T K_k^u i^3$$

puisque le taux d'évènement vrais de triple coïncidence est proportionnel à l'intensité du 'courant' i , celui des coïncidences semi accidentelles est proportionnel à i^2 et enfin le taux d'évènements accidentels est proportionnel à i^3 . Ici encore, nous désignons par i le produit de la densité de gaz par l'intensité du faisceau d'électrons incidents et les K sont des facteurs regroupant les sections efficaces. Par exemple, K_u représente le produit des sections efficaces

doublement différentielles $\sigma_k = \frac{d^2\sigma}{dEd\Omega}(E_k, \theta_k)$ d'émission d'électrons correspondant à chacun

des trois détecteurs, soit $K_u = \sigma_a \cdot \sigma_b \cdot \sigma_c \cdot cte$, où cette dernière constante dépend de grandeurs expérimentales liées aux résolutions énergétiques et angulaires ou à l'efficacité de détection.

L'incertitude relative statistique peut maintenant être écrite en définitive comme suit :

$$\sigma^2 T = \underbrace{\frac{1}{K_T i}}_{T1} + \underbrace{\sum_j r_j (1 + r_j) \frac{K_j}{K_t^2}}_{T2} + \underbrace{\left[r_u (1 + 2r_u + \sum_{j=a,b,c} r_j) \right] \frac{K_u}{K_T^2} i}_{T3}$$

La figure 2.15 illustre la variation de l'incertitude relative statistique en fonction de l'intensité du courant i .

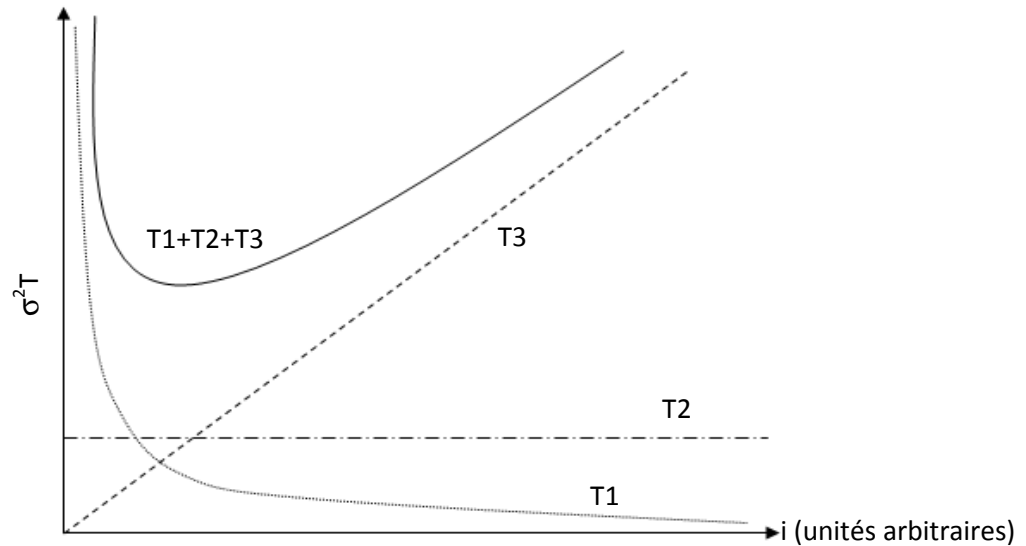


Figure 2.15 : Variation de la précision statistique en fonction de l'intensité du courant incident.

Elle représente chaque terme de l'expression précédente (T1, T2 et T3) ainsi que leur somme qui prévoit un minimum fixant *a priori* la valeur optimale du courant.

Rappelons que dans le cas (e,2e), la précision statistique est une fonction monotone (T1 + T2 de la figure 2.15) qui diminue en fonction de i , et qui s'approche d'une valeur constante (T2) pour les valeurs de i infiniment grandes. Par conséquent, une augmentation de i au-delà du choix optimal entraîne une dégradation du rapport signal sur bruit (voir 2.6.a) sans amélioration sensible de la statistique. Au contraire, dans le cas (e,3e), l'incertitude statistique relative dépend en plus d'un facteur proportionnel à i (terme T3 de l'équation précédente) qui conduit à une valeur spécifique unique du courant qui minimise l'incertitude relative pour des conditions expérimentales données : conséquence directe de la présence du bruit de fond uniforme dû aux trois électrons non corrélés. Il convient donc, avant chaque expérience, de contrôler tous les paramètres expérimentaux pour se rapprocher au mieux de cette valeur de i .

2.7 Bibliographie

- Catoire F, Thèse de doctorat, Université Paris-Sud (2006), en ligne à l'adresse : <http://tel.archives-ouvertes.fr/docs/00/10/79/69/PDF/theseccatoire.pdf>
- Catoire F, Staicu Casagrande E M, Lahmam-Bennani A, Duguet A, Naja A, Ren X G, Lohmann B and Avaldi L, *Rev. Sci. Instrum.*, **78**, 013108 (2007)
- Chérid M, Thèse de doctorat, Université Paris-Sud (1988)
- Dupré C, Lahmam-Bennani A and Duguet A, *Meas. Sci. Technol.*, **2**, 327 (1991)
- El Marji B, Thèse de doctorat, Université Paris-Sud (1996)
- Lampton M and Carlson C W, *Rev. Sci. Instrum.*, **50**, 1093 (1979)
- Lampton M and Paresco F, *Rev. Sci. Instrum.*, **45**, 1098 (1974)
- Lahmam-Bennani A, Wellenstein H F, Duguet A and Lecas M, *Rev. Sci. Instr.*, **56**, 43 (1985)
- Leckey R C and Riley J D, *Appl. Surf. Sci.*, **22**, 196 (1985)
- Lower J, Panajotovic R, Bellm S, Weigold E, *Rev. Sci. Instr.*, **78**, 111301 (2007)
- Roy D, Tremblay D, *Rep. Prog. Phys.*, **53**, 1621, (1920)
- Salgado J A, Thèse de doctorat, Université Paris VII, UPMC (1995)
- Toffoletto F, Leckey R C G and Riley J D, *Nucl. Instr. Meth.*, **B12**, 282 (1985)
- Taouil I, Thèse de doctorat, Université Paris-Sud (2000)
- Wollnik H, *Focussing of charged particules*, ed. Septier, **2**, 164 (1967)
- Miron C, Simon M, Leclercq N and Morin P, *Rev. Sci. Instr.*, **68**, 3728 (1997)

Chapitre 3

Mesures (e,2e) sur les cibles bi-électroniques He et H₂ : effets d'interférences dans H₂

3.1 Introduction

L'ionisation de la molécule d'hydrogène par impact de particules chargées a connu un regain d'intérêt particulier durant ces dernières années ([Misra *et al*, 2004], [Milne-Brownlie *et al*, 2006]). Les effets d'interférence dus à l'ionisation des molécules par impact de particules chargées ont été prédits pour la première fois par Cohen et Fano en 1966 [Cohen *et al*, 1966]. Ils ont indiqué que les phénomènes d'interférence ou de diffraction devraient se produire lorsque les électrons sont libérés d'une molécule poly-atomique. Cohen et Fano utilisent le point de vue de Huygens pour expliquer les structures observées par Samson et Cairns en 1965 [Cairns *et al*, 1965] dans leur mesure de sections efficaces de photo-ionisation de petites molécules comme N₂ et O₂.

Basé sur l'approche de Huygens, la superposition de l'émission des photo-électrons par deux sources atomiques produit des effets d'interférence qui dépendent du rapport de la distance inter atomique à la longueur d'onde des électrons émis. Ils ont utilisé l'ion H₂⁺ à un électron pour montrer que les effets d'interférence sont présents en ionisant une molécule diatomique par impact de particules chargées et que ces effets dépendent aussi de la direction et de l'énergie de l'électron ionisé.

Plus récemment, la présence de structures oscillatoires dans les sections efficaces mesurées par impact d'ions He⁺ sur des cibles diatomiques a été interprétée comme étant dues à des interférences de type fentes d'Young [Frémont *et al*, 2005]. Les interférences sont produites par l'émission cohérente d'électrons à partir des deux sources (les deux fentes), que sont les deux noyaux atomiques dans la cible moléculaire. Ces effets d'interférence, résultant de la superposition des amplitudes d'ionisation, dépendent à la fois de la distance

internucléaire (la largeur des fentes) et de la longueur d'onde de l'électron éjecté de la cible moléculaire [Stia *et al.*, 2003].

En 1999, Walter et Briggs [Walter *et al.*, 1999] ont calculé les sections efficaces de la double photoionisation de la molécule H_2 . En travaillant dans l'espace des moments, ils ont pu analyser théoriquement les effets d'interférence en explorant leur origine. Bien que ces effets soient plus grands lorsqu'on considère une orientation fixe de la molécule, Walter et Briggs ont démontré qu'ils restaient observables même après avoir moyenné sur toutes les orientations moléculaires, pourvu que les énergies des électrons sortants soient judicieusement choisies. Ils ont aussi prouvé l'existence d'oscillations dans les sections efficaces en fonction de l'énergie de l'électron éjecté. La structure oscillatoire observée dans leur résultat et attribuée aux effets d'interférence, doit être vue pour la simple ionisation par impact électronique ($e,2e$) puisque les deux processus produisent le même état final.

En 2001, Stolterfoht *et al.* [Stolterfoht *et al.*, 2001] ont mesuré la section efficace double différentielle (SEDD) absolue due à l'ionisation de H_2 par impact d'ions Kr^{34+} à 60 MeV/u pour un spectre d'énergie des électrons émis allant de 2 eV à 300 eV et pour des angles d'émission de 20° , 30° , 150° , et 160° . En comparant les résultats expérimentaux de H_2 aux sections efficaces calculées sur un atome d'hydrogène, les auteurs ont observé la présence de structures attribuées aux effets d'interférence dans le spectre des électrons éjectés de la molécule H_2 .

En 2004, Misra *et al.* [Misra *et al.*, 2004] ont montré que les effets d'interférence sont présents non seulement aux grandes énergies mais aussi à des énergies relativement plus basses. Ils ont mesuré les sections efficaces doublement différentielles SEDD des électrons éjectés de la molécule d' H_2 en utilisant tout d'abord un faisceau d'ions C^{6+} à 6 MeV/u pour les angles d'émissions des électrons de 45° , 75° , 105° et 150° puis un faisceau d'ions F^{9+} à 1.5 MeV/u pour les angles 45° et 60° et enfin un faisceau de C^{6+} à 1 MeV/u pour les angles 45° et 60° . Les résultats de Misra *et al.* montrent aussi que la fréquence des oscillations dues aux effets d'interférence est plus importante aux grands angles (angle de recul) d'éjection des électrons.

Cette dernière observation de Misra *et al.* est validée par les résultats de Stolterfoht *et al.* [Stolterfoht *et al.*, 2004] qui trouvent que les structures oscillantes dans la mesure des sections efficaces des électrons éjectés de la molécule H_2 en la bombardant avec un faisceau de Kr^{33+} à une énergie de 68 MeV/u sont deux fois plus grandes aux grands angles.

Ces différents auteurs ont donc montré la présence des effets d'interférence dans leurs mesures des sections efficaces doublement différentielles des électrons éjectés de la molécule H_2 lorsqu'elle est ionisée par un faisceau d'ions lourds. La question qui se pose alors est : si ces effets d'interférence sont observés par impact d'ions lourds, sont ils aussi présents dans le cas de collisions par impact électronique ?

En 2005, Kamalou *et al* [Kamalou *et al*, 2005] ont mesuré la SEDD des électrons éjectés de la molécule de deutérium en l'ionisant par impact électronique, à une énergie incidente de 2,4 keV, les énergies des électrons éjectés variant de 2 eV à 2000 eV et les angles d'émission de 30° , 70° et 110° . Les résultats expérimentaux montrent des structures oscillatoires qui varient en fonction de l'énergie des électrons éjectés. Ces résultats sont en accord avec les calculs théoriques attribuant ces structures aux effets d'interférence.

Les travaux théoriques de Stia *et al* [Stia *et al*, 2003] ont montré que les effets d'interférences doivent également être observés dans les sections efficaces triplement différentielles (SETD) d'ionisation de la molécule H_2 par impact électronique. Ces calculs prennent en compte une gamme d'orientations différentes d'une molécule H_2 , ce qui a permis de montrer que les effets d'interférence restent observables après avoir moyenné sur toutes les possibilités d'orientation de la molécule.

Les premières mesures (e,2e) sur la molécule d' H_2 faites dans le but d'observer les effets d'interférence ont été publiées par Murray en 2005 [Murray, 2005]. Dans une géométrie coplanaire asymétrique, Murray *et al* utilisent un faisceau d'électrons incidents de 100,3 eV et des électrons diffusés de 80 eV détectés à un angle de 35° . Leurs mesures n'ont pas mis en évidence l'existence des effets d'interférence dans les SETD de H_2 , à ces 'basses' énergies incidentes.

En 2006, Milne-Brownlie *et al* [Milne-Brownlie *et al*, 2006] ont observé les effets d'interférence de type fentes d'Young dans leurs expériences (e,2e) sur la molécule H_2 . Les électrons incidents avaient une énergie de 250 eV, les énergies des électrons éjectés variant entre 10 eV, 20 eV, 50 eV et 100 eV et l'angle d'émission étant fixe à 15° . L'étude du rapport de l'intensité pic recul sur pic binaire, montrant une diminution en fonction de l'énergie, a été reliée à la présence des effets d'interférence, telles que prédites par [Stia *et al*, 2003].

Dans ce chapitre, nous exposerons les mesures (e,2e) de l'ionisation de la molécule H_2 , dans trois conditions énergétiques différentes, judicieusement choisies pour faire apparaître, pour la première fois dans la même étude (e,2e), le caractère destructif ou constructif des interférences observées. Nos mesures sont par ailleurs comparées à deux modèles moléculaires théoriques. La procédure expérimentale est validée par des mesures

similaires effectuées sur l'atome He dans les mêmes conditions énergétiques, elles-mêmes confrontées aux résultats du modèle CCC [Bray *et al*, 2002].

Pour mettre en évidence les effets d'interférence dans la molécule H₂, à chacune des énergies considérées, le rapport entre les sections efficaces triplement différentielles de H₂ et celles de He est présenté et comparé avec le 'facteur d'interférence' déduit du travail théorique de Stia *et al* [Stia *et al*, 2003].

3.2 Facteur d'interférence

Dans le modèle théorique de Stia *et al* [Stia *et al*, 2003], la SETD de la molécule H₂, moyennée sur toutes les orientations de l'axe moléculaire, est exprimée comme étant le double de celle de l'atome H multipliée par un facteur d'interférence I :

$$\sigma_{e2e}(\text{H}_2) = 2 * \sigma_{e2e}(\text{H}) * I$$

$$\text{avec} \quad I = 1 + \frac{\sin(q\rho)}{q\rho} \quad (1)$$

où $\sigma_{e2e}(\text{H}_2)$ représente la section efficace triplement différentielle de la molécule H₂, $\sigma_{e2e}(\text{H})$ celle de l'atome H, I le facteur d'interférence, \vec{q} le moment de recul de l'ion résiduel et ρ la distance internucléaire (d'équilibre) dans la molécule H₂, $\rho = 1,4$ u.a. [Herzberg, 1950].

En d'autres termes, le rapport $R = \sigma_{e2e}(\text{H}_2) / \sigma_{e2e}(\text{H})$ devrait présenter le même comportement oscillatoire que le facteur d'interférence I .

Pour décrire les effets d'interférence prédits dans la simple ionisation d'une cible moléculaire diatomique orientée, la matrice T utilisée dans le raisonnement théorique du chapitre 1 (§1.5.c), est modifiée tel que (2) :

$$|T_{0a}^b(\vec{\rho})|^2 \cong 2 \cdot [1 + \cos(\vec{q} \cdot \vec{\rho})] \cdot |T_{0a}^A(\vec{\rho})|^2 \quad (2)$$

Le facteur 2 est dû au fait que l'électron est éjecté d'un des *deux* atomes agissants comme des particules indépendantes. Le terme entre crochets représente l'interférence produite par les deux centres. La distance internucléaire de la molécule d'H₂, ρ , est supposée invariante durant le processus de collision. La fonction T_{0a}^A représente la matrice de transition de l'atome cible correspondant. La section efficace triplement différentielle finale correspondant à une géométrie coplanaire est obtenue en moyennant sur toutes les orientations moléculaires possibles. Elle est donnée par la relation :

$$\sigma_3 = \frac{d^5\sigma}{d\Omega_a d\Omega_b dE_a} \cong 2 \left[1 + \frac{\sin(q\rho)}{q\rho} \right] \sigma_A^{(3)}$$

où $\sigma_A^{(3)}$ est la section efficace de l'atome monocentré correspondant. Le terme entre crochets représente l'interférence due à l'émission cohérente à partir des *deux* centres de la molécule. Le facteur 2 tient compte de la diffusion par les deux noyaux.

Le facteur d'interférence I se comporte donc comme une fonction sinus dépendante de l'angle θ_α entre la direction du moment de transfert et l'électron éjecté (voir figure 1.1). La figure 3.1 représente ce facteur d'interférence en fonction de l'angle de l'électron éjecté dans les conditions expérimentales utilisées dans ce chapitre, à savoir $E_b = 37$ eV, 74 eV et 205 eV. Les 3 courbes sont arbitrairement normalisées à l'unité dans la région du pic binaire (c.à.d. aux alentours de $\theta_K \sim 60^\circ$, cf Table 3.1). Elles montrent que le facteur I possède un comportement oscillatoire et qu'il change considérablement entre la région du binaire et celle du recul. Aux énergies 37 et 74 eV, le facteur d'interférence I, qui intervient comme un facteur multiplicatif de $\sigma_A^{(3)}$, va avoir pour effet d'augmenter l'intensité du lobe binaire

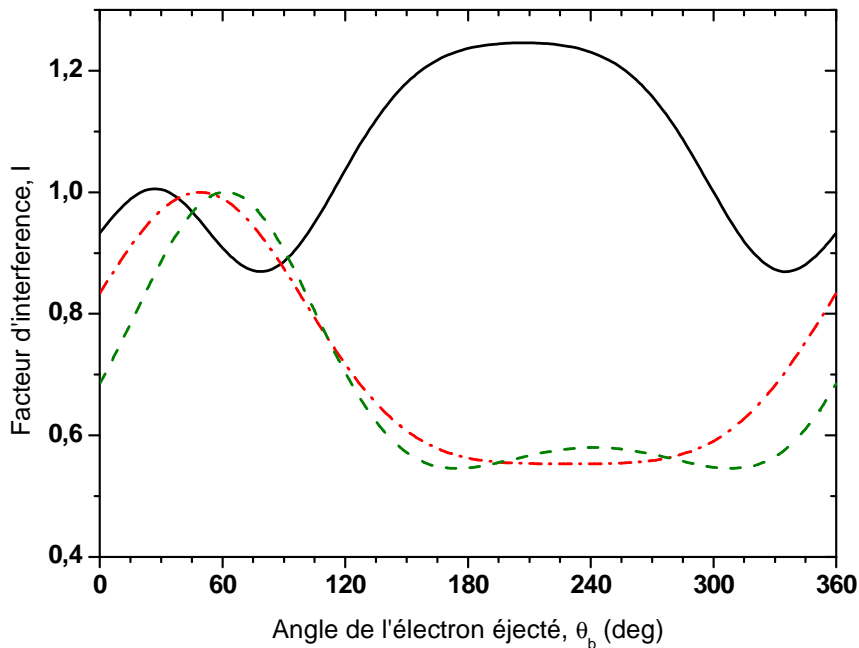


Figure 3.1: Facteur d'interférence I tracé en fonction de l'angle de l'électron éjecté aux énergies des électrons éjectés $E_b = 37$ eV (tiret en vert), $E_b = 74$ eV (tiret-point en rouge) et $E_b = 205$ eV (continu en noir). Les 3 courbes sont arbitrairement normalisées à l'unité dans la région du pic binaire, vers $50-60^\circ$.

(autour de $\sim 60^\circ$), ou inversement de diminuer l'intensité du recul (autour de $\sim 240^\circ$) relativement à celle du binaire. Par contre, à l'énergie 205 eV, le facteur I produit une augmentation relative de l'intensité de recul (ou une diminution de celle binaire).

Cependant, comme le maximum du facteur d'interférence dans la région du binaire correspond approximativement à la direction du moment de transfert, l'effet du facteur d'interférence dans cette région est très difficile à détecter, sauf si les résultats expérimentaux sont sur une échelle absolue. Nos mesures de sections efficaces présentées dans l'ensemble de ce manuscrit sont sur une échelle relative. L'influence du facteur d'interférence ne pourra donc pas être vérifiée directement en faisant une simple analyse de la seule région du pic binaire, ou celle du recul. Un rapport entre les intensités dans les deux régions doit être fait. Tenant compte de la normalisation utilisée dans la figure 3.1, l'interférence va se traduire par une 'destruction' du lobe de recul par rapport au binaire pour les deux énergies 37 eV et 74 eV, ou au contraire par son augmentation par rapport au binaire dans le cas de 205 eV. Nous verrons cette partie en détail dans le paragraphe suivant.

3.3 Conditions expérimentales

Les expériences discutées dans ce chapitre ont été réalisées en utilisant la technique de détection en coïncidence détaillée dans le chapitre 2, dans une géométrie coplanaire asymétrique. Pour s'affranchir de la résolution angulaire relativement modeste ($\Delta\theta_a \sim \pm 1,5^\circ$, voir chapitre 2) de l'analyseur a (qui sélectionne les électrons 'rapides' diffusés), résolution qui pourrait affecter les mesures de SETD en 'noyant' les effets qu'on cherche à observer, nous avons placé à l'entrée de cet analyseur une plaque métallique munie de deux fentes situées à $\pm 6^\circ$ et d'ouverture angulaire $\pm 0.25^\circ$, ce qui permet une bonne définition de l'angle de diffusion θ_a . La convention de signe utilisée pour les angles dans ce chapitre considère les angles positifs dans la direction des aiguilles d'une montre, l'angle zéro étant défini par la direction du faisceau incident. Les électrons éjectés (désignés par l'indice b) sont détectés suivant les gammes angulaires comprises entre $\theta_b = 20^\circ$ - 160° et 200° - 340° . Ces domaines sont divisés, lors de l'exploitation des données, en secteurs de largeur 5° , soit une résolution angulaire $\Delta\theta_b \sim \pm 2,5^\circ$. Les mesures de la section efficace sont effectuées sur la molécule H_2 et sur son homologue à centre unique, l'atome He, en fixant l'énergie des électrons diffusés à $E_a = 500$ eV et celle des électrons éjectés à $E_b = 37$ eV, 74 eV et 205 eV. En raison du faible taux de coïncidence, en particulier à l'énergie 205 eV, le spectromètre a été réglé pour une résolution énergétique en coïncidence réduite soit $\Delta E_{\text{coïn}} = \pm 1.4$ eV.

En tenant compte du potentiel d'ionisation IP de la molécule d'hydrogène et de l'atome d'hélium (15,5 eV et 24,6 eV respectivement), nous avons ajusté l'énergie du faisceau d'électrons incidents E_0 en utilisant l'équation de conservation d'énergie $E_0 = E_a + E_b + IP$, pour chaque énergie des électrons éjectés. Le tableau 3.1 résume les conditions cinématiques ainsi que la valeur K et la direction θ_K du moment de transfert \vec{K} dans chacune des mesures.

Cible	E_0 (eV)	E_a (eV)	E_b (eV)	K (u.a)	θ_K (°)
H ₂	552,5	500	37	0.72	61.54
He	561,6	500	37	0.75	58.05
H ₂	589,5	500	74	0.84	48.86
He	598.6	500	74	0.87	46.39
H ₂	720,5	500	205	1.40	26.91
He	729.6	500	205	1.44	26.10

Table 3.1 : conditions cinématiques, valeurs et directions du moment de transfert pour chacune des mesures de la section efficace ($e,2e$) de H₂ et He.

3.4 Résultats et discussions

Dans ce paragraphe, les résultats sont divisés en deux parties. Dans la première, les mesures des distributions angulaires des SETD de He et H₂ dans les conditions discutées précédemment sont présentées et comparées avec les résultats de modèles théoriques représentant l'état de l'art dans le domaine. Dans la deuxième partie, le rapport entre les sections efficaces de l'ionisation de H₂ et He est présenté et discuté. Il est comparé au facteur d'interférence I (fig. 3.1) prévu par Stia *et al* [Stia *et al*, 2003] pour chaque énergie des électrons éjectés. Le bon accord obtenu permet d'interpréter les observations en termes d'effets d'interférence dus aux deux centres moléculaires.

3.4.1 Distributions angulaires des sections efficaces

Les parties (a) des figures 3.2, 3.3 et 3.4 représentent la SETD de l'ionisation de He en fonction de l'angle de l'électron éjecté pour les trois énergies 37 eV, 74 eV et 205 eV, respectivement. Les parties (b) des mêmes figures représentent le résultat analogue pour la molécule H₂. Les données expérimentales sont comparées :

- pour He, au modèle CCC développé par Bray *et al* en Australie [Bray *et al*, 2002]
- pour H₂, d'une part, au modèle FBA-TCC développé par Joulakian et ses collaborateurs à Metz en France [Chuluunbaatar *et al*, 2004], et d'autre part, au modèle M3DW-

OAMO développé par Madison et ses collaborateurs à Rolla aux Etats-Unis [Gao *et al*, 2005].

Le modèle CCC est parmi les modèles qui décrivent le mieux le processus de la simple ionisation de l'atome He à des énergies incidentes élevées ou moyennes. Les deux autres modèles constituent l'état de l'art des modèles qui décrivent l'ionisation moléculaire. Ces trois approches théoriques ont été déjà discutées dans le chapitre 1.

Chacune des distributions angulaires illustrées dans les figures 3.2, 3.3 et 3.4 présente les caractéristiques types d'une distribution de section efficace triplement différentielle. En effet, nous avons déjà mentionné dans le chapitre 1 que dans une géométrie asymétrique et dans des conditions cinématiques intermédiaires, l'ionisation d'une orbitale s résulte en une distribution angulaire de section efficace formée d'un lobe binaire (centré autour du transfert \vec{K}) et d'un lobe de recul (centré autour de $-\vec{K}$). Par ailleurs, le maximum du lobe binaire de H₂ est positionné pratiquement au même angle éjecté que celui de He. Ceci valide la prédiction de Walter et Briggs [Walter *et al*, 1999] qui suppose que la distribution angulaire d'une molécule est très similaire à celle de son homologue à atome unique.

Tout d'abord, commentons les sections efficaces de He présentées dans la partie (a) des figures 3.2, 3.3 et 3.4, comparées aux résultats du modèle CCC. Nous trouvons un excellent accord entre expérience et théorie aux trois énergies considérées, aussi bien en ce qui concerne la forme des distributions que la position du lobe binaire. Les quelques différences observées dans la région du recul sont probablement d'origine statistique, dues aux faibles taux de comptage dans ces régions. Elles reflètent la difficulté de réaliser des mesures d'ionisation caractérisées par de faibles sections efficaces : ce n'est pas sans raison que les mesures présentées ici n'ont jamais été réalisées auparavant. Une autre origine possible de ces différences pourrait être liée à une diffusion parasite sur les surfaces métalliques au voisinage du trajet du faisceau, qui se manifeste essentiellement aux grands angles, vers 300°. D'autre part, les résultats du modèle CCC, tout comme nos données expérimentales présentent un décalage de $\sim 10^\circ$ par rapport à la direction du moment de transfert (θ_K). A l'énergie éjectée de 205 eV, le décalage expérimental est un peu plus prononcé que celui de CCC. Ces observations sont compatibles avec les conclusions connues de l'ionisation de He [Ehrhardt *et al*, 1986] et [Lahmam-Bennani, 1991] : le shift du lobe

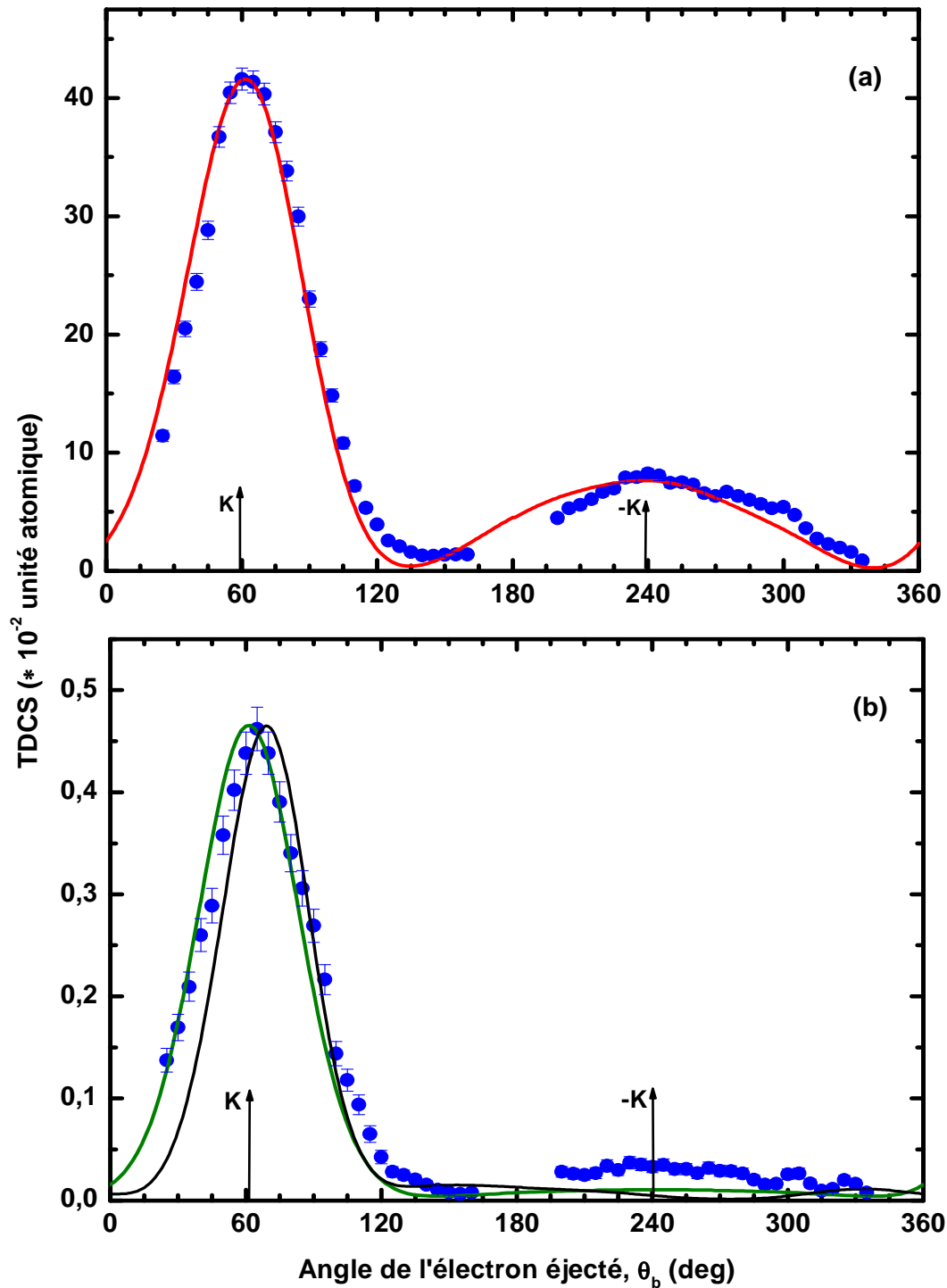


Figure 3.2: SETD de He (graphe a) et H₂ (graphe b) pour les mêmes paramètres expérimentaux suivants : $E_a = 500$ eV, $E_{ej} = 37$ eV et $\theta_a = -6^\circ$. Les valeurs respectives du transfert sont : $K = 0.75$ u.a. et 0.72 u.a. Dans le cas d'He, la courbe en rouge correspond au modèle CCC (échelle absolue). Dans le cas d'H₂ la courbe en trait fin vert correspond au modèle FBA-TCC (échelle absolue) et celle en trait gras noir au modèle M3DW-OAMO (multiplié par 2,5).

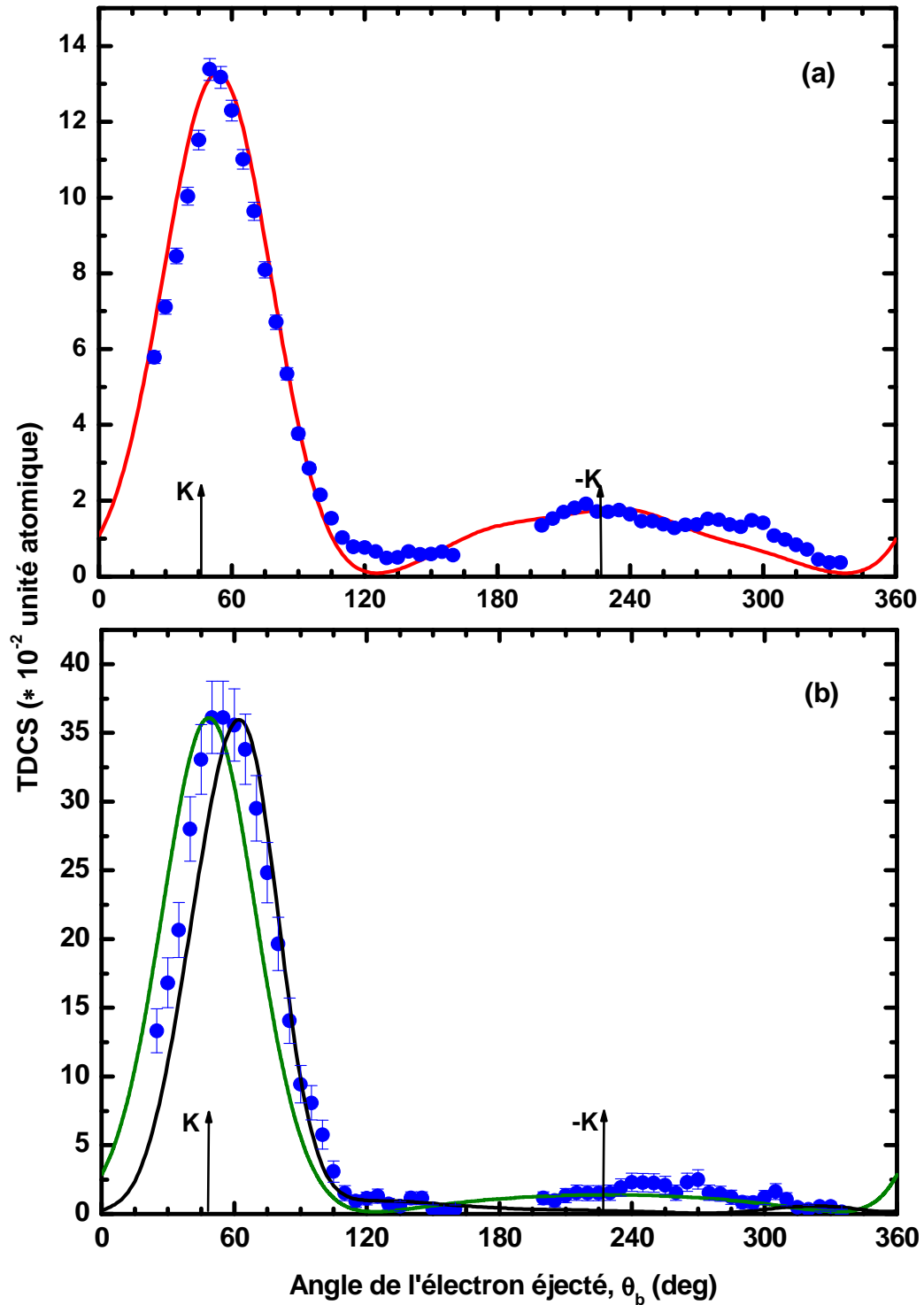


Figure 3.3: SETD de He (graphe a) et H₂ (graphe b) pour les mêmes paramètres expérimentaux suivants : $E_a = 500$ eV, $E_{ej} = 74$ eV et $\theta_a = -6^\circ$. Les valeurs respectives du transfert sont : $K = 0.87$ u.a. et 0.84 u.a. Dans le cas d'He, la courbe en rouge correspond au modèle CCC (échelle absolue). Dans le cas d'H₂ la courbe en trait fin vert correspond au modèle FBA-TCC (échelle absolue) et celle en trait gras noir au modèle M3DW-OAMO (multiplié par 2,8).

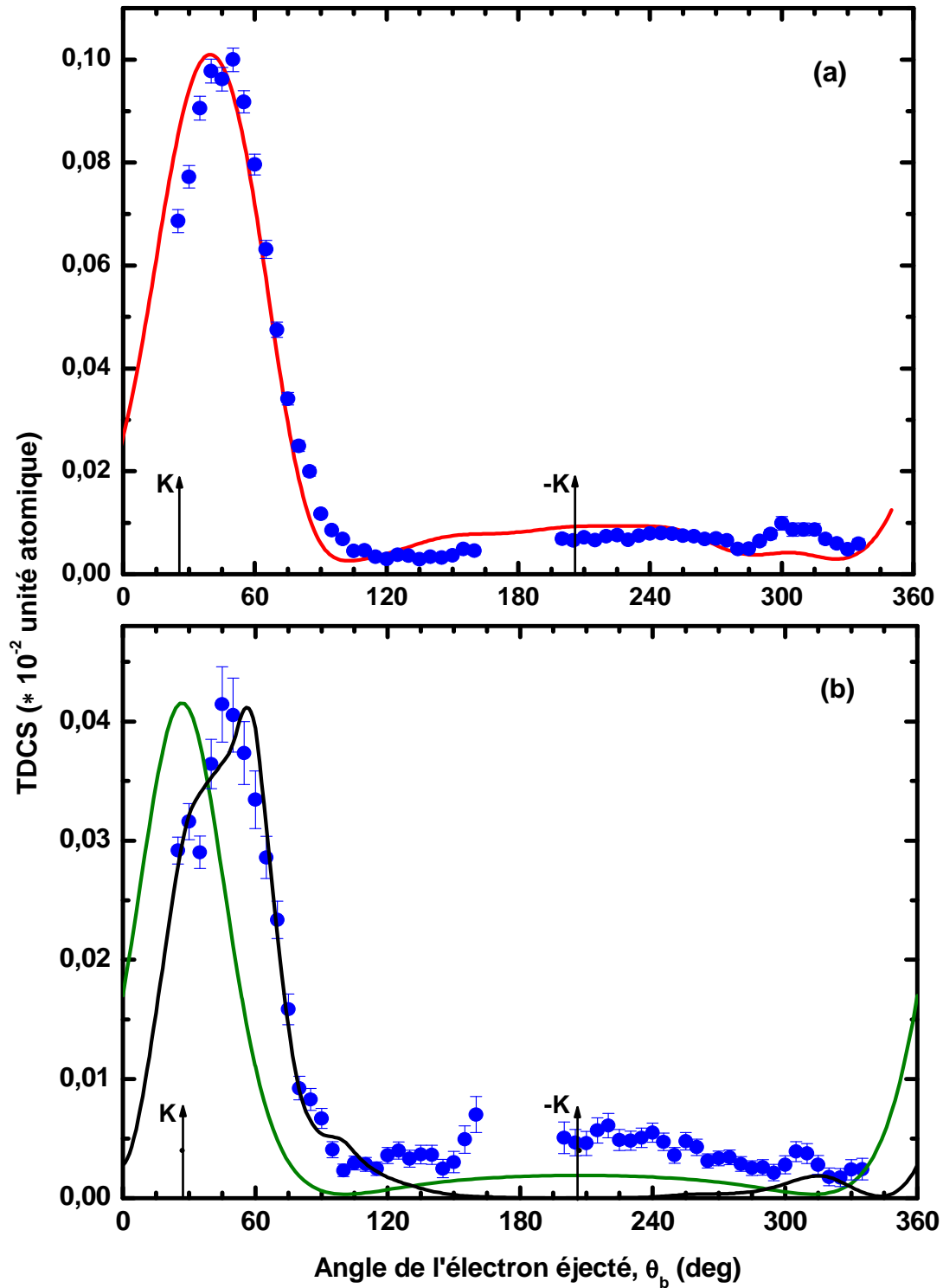


Figure 3.4: SETD de He (graphe a) et H₂ (graphe b) pour les mêmes paramètres expérimentaux suivants : $E_a = 500$ eV, $E_{ej} = 205$ eV et $\theta_a = -6^\circ$. Les valeurs respectives du transfert sont : $K = 1.44$ u.a. et 1.4 u.a. Dans le cas d'He, la courbe en rouge correspond au modèle CCC (échelle absolue). Dans le cas d'H₂ la courbe en trait fin vert correspond au modèle FBA-TCC (échelle absolue) et celle en trait gras noir au modèle M3DW-OAMO (multiplié par 6,7).

binaire par rapport à la direction de \vec{K} est prévu lorsque la première approximation de Born devient insuffisante. Ceci semble être le cas ici, où des effets non Born-I (diffusion multiples,...) sont certainement présents, et sont inclus dans le modèle CCC.

Ce bon accord expérience-théorie obtenu sur l'hélium valide aussi notre procédure expérimentale et nous pousse à l'appliquer avec confiance à l'autre cible étudiée ici, la molécule d'hydrogène, exactement dans les mêmes conditions expérimentales utilisées pour He.

Dans le cas de la molécule d'hydrogène, les sections efficaces mesurées sont présentées dans la partie (b) des figures 3.2, 3.3 et 3.4, comparées aux deux modèles théoriques FBA-TCC et M3DW-OAMO.

Pour les lobes binaires, aux énergies éjectées de 37 eV et 74 eV, la prédiction de FBA-TCC semble en meilleur accord avec l'expérience que celle de M3DW-OAMO, tandis que ce dernier modèle semble mieux décrire le lobe binaire à 205 eV. En particulier, le modèle M3DW-OAMO présente à 205 eV un épaulement dans la région des petits angles du lobe binaire (vers 40° -figure 3.4 (b)), épaulement qui semble être aussi présent dans nos mesures expérimentales mais la statistique de ces données ne permet pas de confirmer définitivement sa présence. L'origine de cet épaulement est interprétée par Don Madison¹ comme étant une diffusion élastique de l'électron incident par la cible.

Quant aux lobes de recul, et à l'exception du modèle FBA-TCC à 74 eV, les deux modèles prévoient une intensité de recul plus petite que celle mesurée, voire même parfois une absence presque totale de ce lobe dans le calcul M3DW-OAMO. Or, nous savons que le lobe de recul correspond au maximum du transfert \vec{q} de moment à l'ion. Donc le comportement de M3DW-OAMO dans cette région met en évidence la faiblesse de l'approximation OAMO aux grandes valeurs de q , comme nous allons le voir en détail dans le chapitre suivant. D'autre part, le modèle FBA-TCC prévoit un lobe binaire aligné dans la direction de $+\vec{K}$, comme on s'y attend pour tout modèle de 1^{er} ordre (First Born). Le modèle M3DW-OAMO inclut dans l'état final les interactions post collisionnelles (PCI) entre les deux électrons du continuum, ce qui a pour effet de décaler les lobes vers les grands angles. Cependant, cet effet semble être surestimé par la théorie.

Soulignons que ces deux modèles (FBA et M3DW) seront à nouveau comparées à nos expériences (e,2e) sur la molécule N₂ dans le chapitre suivant, sous les mêmes conditions

¹ Communication privée.

expérimentales. En particulier, l'accord expérience - théorie est moins satisfaisant que pour les expériences (e,2e) sur la molécule H₂ de ce chapitre. Ceci peut être attribué à la difficulté de décrire la molécule d'azote, beaucoup plus complexe que celle de H₂. D'autre part, le modèle TCC a été testé bien valide [Weck *et al*, 2001] dans des expériences (e,2e) sur la molécule H₂ à haute énergie (de l'ordre de 4 keV) [Chérid *et al*, 1989]. La défaillance du modèle dans le présent travail peut donc être attribuée au moins en partie à la différence dans l'énergie d'impact. A une énergie d'environ 600 eV utilisées dans ce travail, la première approximation de Born semble insuffisante, et on retrouve l'influence non négligeable d'effets d'ordre supérieur, déjà notés ci-dessus dans le cas de He.

3.4.2 Effets d'interférences

La figure 3.5 représente les rapports expérimentaux R (voir §3.2) des sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation de H₂ relatives à celles de He, $\sigma_{e,2e}(H_2)/\sigma_{e,2e}(He)$, en fonction de l'angle de l'électron éjecté θ_b pour les trois énergies d'éjection 37 eV (a), 74 eV (b) et 205 eV (c). Comme expliqué au paragraphe 3.2, ce rapport R est comparé avec le facteur d'interférence I tracé sur la figure 3.1. Nos rapports expérimentaux ainsi que la courbe théorique sont normalisés arbitrairement à l'unité dans la région du binaire. Un accord qualitatif entre R et I est bien observé aux trois énergies considérées. Les grandes barres d'erreur dans certains domaines angulaires sont dues au fait que R représente le rapport entre deux quantités très petites.

Comme prévu, à $E_b = 37$ eV et 74 eV, (figure 3.5 (a) et (b)), une diminution notable de l'intensité du recul par rapport au binaire est observée. Alors qu'à $E_b = 205$ eV, c'est le contraire, on observe une augmentation de l'intensité de recul par rapport au binaire. Dans la figure 3.5 (b) et (c), ces effets sont plus prononcés dans l'expérience que dans la théorie, mais dans tous les cas l'effet est bien présent. L'accord raisonnable entre nos données expérimentales et la prédiction théorique de Stia *et al* [Stia *et al*, 2003] conforte l'idée que nos observations peuvent être attribuées à des effets d'interférence, constructives ($E_b = 37$ eV et 74 eV) et destructives ($E_b = 205$ eV).

A notre connaissance, c'est la première fois que ces deux caractères constructif et destructif du processus d'interférence sont simultanément observés dans une même expérience (e,2e). Qualitativement, l'image est analogue au défilement des franges qui se produit lorsqu'on varie la longueur d'onde (ici l'énergie de l'électron éjecté) dans l'expérience des fentes d'Young.

Un pic est observé vers 60° dans la figure 3.5 (b), correspondante à $E_b = 74$ eV : il pourrait être tentant de l'attribuer au fait que la distribution de charge dans H₂ est plus large que celle

dans He, résultant (par transformation de Fourier) en une distribution initiale de moment plus étroite dans H₂, et donc un pic binaire plus étroit également. Cependant, une telle interprétation ne peut être retenue, car, d'une part, elle implique qu'un pic similaire devrait être observé aux 3 valeurs énergétiques considérées, ce qui n'est pas le cas. D'autre part, le pic observé est en accord qualitatif avec le comportement du facteur d'interférence prédit par Stia *et al*, qui, lui, ne dépend pas de la distribution de moment de la cible. En conséquence, l'origine de ce pic doit être de nature géométrique et/ou cinématique, tout comme l'est le facteur I.

Il faut signaler à ce stade que la réduction de l'intensité du lobe de recul par rapport au binaire pourrait être attribuée à d'autres causes. En effet, nous savons que le pic de recul est essentiellement dû à la diffusion élastique de l'électron éjecté par le noyau de la cible. Par

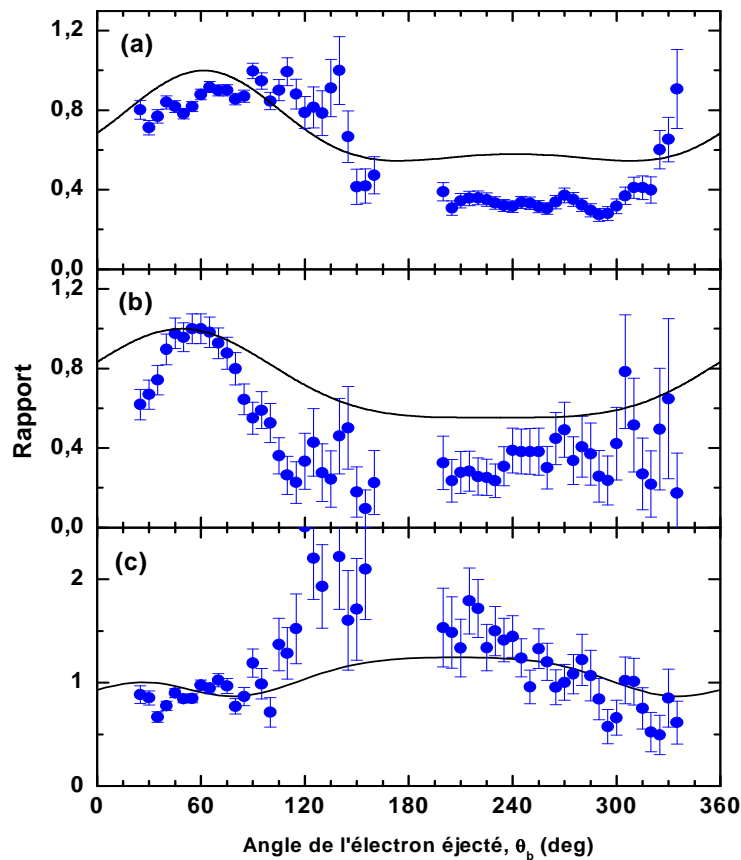


Figure 3.5 : Rapport expérimental des sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation de H₂ relatives à celles de He, $\sigma_{e,2e}(H_2)/\sigma_{e,2e}(He)$ en fonction de l'angle de l'électron éjecté θ_e à l'énergie éjectée de 37 eV (a), 74 eV (b) et 205 eV (c). Les courbes représentent le facteur d'interférence théorique I de la figure 3.1

conséquent, la charge nucléaire plus diffuse dans H_2 comparée à celle de He pourrait mener à une réduction du pic de recul. En plus, l'interaction entre l'électron diffusé et le cœur de la cible peut aussi contribuer à cette réduction. Cependant, l'idée d'attribuer la réduction du binaire par rapport au recul aux effets d'interférence se base sur le fait que nous observons dans notre résultat non seulement des réductions du lobe de recul (à $E_b = 37$ eV et 74 eV) mais aussi son augmentation (à $E_b = 205$ eV) par rapport au binaire. Une telle augmentation ne pourra en aucun cas résulter de la charge plus diffuse du noyau de H_2 et elle est prédite par Stia *et al.* Pour que l'étude de ce point apporte des informations supplémentaires à notre discussion, il faut susciter le développement de modèles théoriques plus sophistiqués pour mieux décrire la distribution angulaire aux grands angles du recul.

Enfin, rappelons que notre analyse s'appuie, comme celle dans [Milne-Brownlie *et al.*, 2006], sur l'hypothèse que le facteur d'interférence I peut être comparé au rapport des sections efficaces de H_2 par rapport à l'He au lieu de deux fois celles de l'atome H, ces dernières étant très difficilement mesurables. Cette hypothèse peut paraître contestable, mais l'accord raisonnable avec la prédiction théorique de Stia *et al* fournit un argument positif en faveur de la validité de notre approche.

3.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les sections efficaces triplement différentielles relatives pour l'ionisation simple de la molécule H_2 à ~ 600 eV en utilisant la méthode (e,2e). Dans le but de valider notre procédure expérimentale, nous avons effectué un travail similaire pour l'atome He : les résultats sont en excellent accord avec ceux du modèle référence CCC. Les résultats de H_2 sont comparés à deux modèles théoriques, les plus élaborés dans le domaine. Un accord raisonnable est observé entre l'expérience et la théorie, surtout par rapport à la distribution du lobe binaire. Le désaccord dans la comparaison concerne, d'une part, la position des lobes binaires attribuée à des effets de second ordre, et d'autre part, la faiblesse de l'intensité de recul prévue par les calculs par rapport à celle expérimentale, ce qui appelle à un développement pour une meilleure modélisation de l'interaction avec le noyau.

La comparaison directe entre les résultats de H_2 et ceux de He montre une variation de l'intensité du pic de recul par rapport à celle du binaire dans le cas de la molécule, en accord avec le comportement prévu théoriquement par Stia *et al* en 2003.

L'accord qualitatif entre nos rapports expérimentaux $\sigma_{e,2e}(H_2)/\sigma_{e,2e}(He)$ et le facteur I démontre la présence des effets d'interférences dans la molécule H_2 prévus théoriquement par [Stia *et al.*, 2003] et observés expérimentalement par [Milne-Brownlie *et al.*, 2006].

Dans ce travail, le caractère constructif ou destructif de ces interférences est observé pour la première fois par la méthode (e,2e).

3.6 Bibliographie

- Bray I, Fursa D V, Kheifets A and Stelbovics A T J. Phys. B, **35**, R117 (2002)
- Briggs J S and Walter M, Physics Essays, **13**, 297 (2000)
- Chuluunbaatar O, Joulakian B, Tsookhuu K and Vinitzky S I, J. Phys. B, **37**, 2607 (2004)
- Cohen H D and Fano U, Phys. Rev. A, **150**, 30 (1966)
- Ehrhardt H, Jung K, Knoth G and Schlemmer P, Z. Phys. D, **1**, 3 (1986)
- Frémont F, Hajaji A, Naja A, Chesnel J and Tanis J A, Phys. Rev. A, **72**, 050704 (2005)
- Gao J F, Madison D H and Peacher J L, Phys. Rev. A, **72**, 020701 (2005)
- Herzberg G, Molecular Spectra and Molecular Structure, Spectra of diatomic Molecules, Vol. 1, Krieger Publishing Company, Florida, 2^{ème} edition (1950)
- Kamalou O, Chesnel J Y, Martina D, Hanssen J, Stia C R, Fojon A, Rivarola R D and Frémont F, Phys. Rev. A, **71**, 010702 (2005)
- Lahmam-Bennani A, J. Phys. B, **24**, 2401 (1991)
- Milne-Brownlie D S, Foster M, Junfang G, Lohmann B and Madison D H, Phys. Rev. Lett., **96**, 233201 (2006)
- Misra D, Kadhane U, Singh Y P, Tribedi L C, Fainstein P D and Richard P, Phys. Rev. Lett., **92**, 153201 (2004)
- Murray A J, J. Phys. B, **38**, 1999 (2005)
- Cairns R B and Samson A R J, Phys. Rev., **139**, A1403 (1965)
- Stia C R, Fojon O A, Weck P F, Hanssen J and Rivarola R D, J. Phys. B, **36**, L257 (2003)
- Stolterfoht N, Sulik B, Hoffmann V, Skogvall B, Chesnel J Y, Rangama J, Frémont F, Hennecart D, Cassimi A, Husson X, Landers A L, Tanis J A, Galassi M E and Rivarola R D, Phys. Rev. Lett., **87**, 023201 (2001)
- Stolterfoht N, Sulik B, Skogvall B, Chesnel J Y, Frémont F, Hennecart D, Cassimi A, Adoui L, Hossain S and Tanis J A, Phys. Rev. A, **69**, 012701 (2004)
- Walter M and Briggs J, J. Phys. B, **32**, 2487 (1999)
- Weck P, Fojon O A, Hanssen J, Joulakian B, and Rivarola R D, Phys. Rev. A, **63**, 042709 (2001)

Chapitre 4

Ionisation de cibles multiélectroniques : mesures (e,2e) sur le néon et l'azote moléculaire

4.1 Introduction

Comme nous l'avons précisé dans le chapitre 1, la section efficace triplement différentielle (SETD) est déterminée expérimentalement en détectant, par la technique de coïncidence, les deux électrons diffusé et éjecté issus de la même collision ionisante.

L'étude de la dynamique de l'ionisation (e,2e) d'une cible atomique ou moléculaire devient d'autant plus complexe que le nombre des électrons de la cible, et/ou que le nombre de noyaux constituants de la molécule est important. Pour cette raison, l'atome d'hélium a été le plus abondamment étudié, comparé par exemple aux autres gaz rares, néon, argon, etc.

Par ailleurs, contrairement au cas atomique, on ne trouve dans la littérature que peu de travaux concernant l'étude de l'ionisation des molécules par la méthode (e,2e) (exception faite des études de structure, connues sous le nom générique de 'Electron Momentum Spectroscopy' EMS, où un grand nombre de petites molécules ont fait l'objet d'investigations détaillées, voir par exemple [Brion *et al*, 2001] et [Weigold *et al*, 1999]). En effet, les difficultés sont aussi bien d'ordre expérimental que théorique. D'un point de vue expérimental, d'une part on ne sait pas encore préparer la molécule cible dans un état rovibrationnel donné, et d'autre part la résolution énergétique atteinte expérimentalement ne permet pas de résoudre les états rotationnels et vibrationnels de la molécule [Jung *et al*, 1975]. D'un point de vue théorique, ces degrés de liberté supplémentaires compliquent la description de la réaction. En outre, la représentation des états du continuum des électrons diffusé et éjecté dans le champ de l'ion moléculaire résiduel est loin d'être simple. Néanmoins, malgré ces difficultés, un intérêt certain s'est fait jour depuis peu pour l'étude de l'ionisation moléculaire, en raison de son importance dans plusieurs domaines de la physique, tels que l'astrophysique ou la physique de la haute atmosphère ou encore l'irradiation de la matière vivante par les particules

chargées. La comparaison avec l'ionisation de cibles atomiques 'voisines' devrait mettre en relief des effets purement moléculaires, qui viennent « perturber » la SETD.

Dans ce chapitre et après avoir étudié l'ionisation de l'hélium et de l'hydrogène moléculaire dans le chapitre 3, nous étendons notre étude à l'ionisation du néon et de l'azote moléculaire. Pour cela nous avons réalisé des expériences (e,2e) de simple ionisation en couche externe et interne pour ces deux cibles atomique et moléculaire. Nous avons mesuré la SETD dans les conditions cinématiques nouvelles définies tout au long de ce travail et qui se caractérisent par un grand transfert de moment à l'ion résiduel, qui jouera ainsi un rôle important dans l'intensité de recul. Nous nous sommes fixés pour but dans ce travail de tester des modèles théoriques bien connus, représentant l'état de l'art dans le domaine de l'ionisation par impact électronique, cf. chapitre 1.

Dans ce qui suit, nous présentons les résultats et les discussions correspondants dans deux sections : la section A concerne l'étude de la simple ionisation du néon Ne et la section B concerne celle du diazote N₂. Dans chacune des deux sections, les distributions angulaires mesurées sont comparées avec les résultats des prédictions théoriques.

Section 4.A : Mesures (e,2e) sur Ne

Dans des expériences (e,2e) caractérisées par un transfert d'impulsion important à l'ion résiduel, plusieurs résultats récents ([Stevenson *et al*, 2007], [Staicu Casagrande *et al*, 2008]) ont conforté l'idée que l'ionisation simple de l'He dans une géométrie coplanaire est maintenant bien décrite par des modèles sophistiqués, par exemple les modèles CCC ou DWBA. Alors que dans ces mêmes conditions, des mesures similaires faites, par exemple, sur l'Ar par l'équipe d'Orsay [Catoire *et al*, 2006] ont mis en évidence des désaccords avec les prédictions de modèles théoriques décrivant l'ionisation d'une cible multi-électronique, par exemple le modèle BBK décrit dans le chapitre 1 et le modèle DWBA-RM¹.

¹ Le modèle DWBA-RM est basé sur le modèle DWBA décrit dans le chapitre 1, couplé à la méthode de la matrice R (RM). L'idée fondamentale de cette méthode est que la configuration spatiale décrivant le projectile et la cible est divisée en deux régions. Dans la région interne, l'interaction est forte et le processus de collision est difficile à calculer. Dans la région externe par contre, l'interaction est faible et le problème est solvable de façon exacte. La méthode de la matrice R consiste à développer la solution de l'équation de Schrödinger pour n'importe quelle énergie dans le domaine de la région interne sur une base complète d'états propres [Burke *et al*, 1975].

Afin d'éclaircir l'origine de ce désaccord, nous avons décidé de poursuivre la recherche dans ce domaine, avec la même cinématique (faible transfert de moment à la cible et grand transfert d'impulsion à l'ion résiduel), en considérant le cas du Ne ($1s^2 2s^2 2p^6$), un cas intermédiaire entre l'He ($1s^2$), la cible la moins complexe, et l'Ar ($1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6$) qui est plus complexe. Deux couches électroniques sont explorées dans nos mesures de la SETD du Ne : la couche externe 2p et la couche interne 2s.

4. A.1 Expérience

Dès le début de ce travail, nous avons initié et réussi à susciter un vif intérêt de la part de plusieurs équipes expérimentales et théoriques pour la problématique que nous abordions. C'est ainsi que, d'une part, les expériences ont été faites dans deux laboratoires différents, à Orsay et à Adelaïde¹ en Australie. Le but était le suivant : en raison de la difficulté à réaliser ces mesures, due à la faiblesse des sections efficaces correspondantes, il a été décidé de produire deux jeux de données expérimentales, obtenus en utilisant deux techniques différentes sous les mêmes conditions cinématiques. D'autre part, les mesures sont comparées aux calculs fournis par quatre équipes théoriques différentes, (en France, en Australie et aux USA), utilisant les approches les plus sophistiquées actuellement dans la description de l'ionisation des cibles multiélectroniques.

Le dispositif expérimental utilisé à Orsay ainsi que la technique d'analyse multi-angle et de coïncidence sont décrits en détail dans le chapitre 2. Celui de l'expérience d'Adelaïde est détaillé dans la référence [Haynes *et al*, 2000]. Brièvement, il s'agit d'un spectromètre à électrons équipé d'un double analyseur hémisphérique et de détecteurs channeltrons. L'ensemble est monté dans un même plan, canon à électron compris. Les deux électrons diffusé et éjecté après la collision sont donc détectés dans une géométrie coplanaire asymétrique. Les électrons éjectés sont détectés dans une gamme angulaire limitée par rapport à celle de l'appareil d'Orsay, en raison des contraintes d'encombrement imposées par le canon à électrons et le double analyseur. Cette gamme s'étend entre 50° et 135° pour le lobe binaire et entre 225° et 290° pour le lobe de recul. Mais dans les mesures faites pour ce travail, l'équipe d'Adelaïde a pu avoir accès à la région comprise entre 30° et 50° du lobe binaire grâce à un « MAC » (de l'anglais : magnetic angle changer) décrit en détail dans [Stevenson *et al*, 2006]. Brièvement le « MAC » permet d'accéder à des zones angulaires

¹ ARC Centre of Excellence for Antimatter-Matter Studies, The University of Adelaide, Adelaide, SA 5005, Australia.

interdites en introduisant une courbure astucieuse des trajectoires électroniques par un champ magnétique au voisinage de la zone de collision.

Les données à Orsay et à Adelaïde sont mesurées sous les mêmes conditions cinématiques (Tableau 4.1) : énergie des électrons éjectés $E_b = 74$ eV, celle des électrons diffusés $E_a = 500$ eV. Ces derniers sont détectés sous l'angle $\theta_a = 6^\circ$ avec une acceptance angulaire de $\pm 0.25^\circ$ pour l'appareil d'Orsay et de $\pm 1,5^\circ$ pour l'appareil d'Adelaïde. La résolution énergétique de notre dispositif est de $\Delta E_{\text{coïn}} = \pm 1,4$ eV et celle du dispositif d'Adelaïde est $\Delta E_{\text{coïn}} = \pm 1$ eV. Compte tenu de ces paramètres, la résolution en transfert d'impulsion est $\Delta K = \pm 0,02$ u.a. et la résolution de la direction du transfert est $\Delta \theta_K = \pm 1^\circ$ à Orsay, alors qu'à Adelaïde $\Delta K = \pm 0,12$ u.a. et $\Delta \theta_K = \pm 6,5^\circ$. L'énergie incidente est ajustée en respectant la loi de conservation de l'énergie : $E_0 = E_a + E_b + E_I$ avec E_I l'énergie d'ionisation des couches : $E_I = 21,6$ eV pour Ne-2p et 48,5 eV pour Ne-2s. L'énergie incidente vaut alors $E_0 = 595,6$ eV et 622,5 eV, respectivement.

Paramètres	Expérience d'Orsay	Expérience d'Adelaïde
<i>Energies</i>	$E_a = 500$ eV et $E_b = 74$ eV	
$\Delta E_{\text{coïn}}$	$\pm 1,4$ eV	± 1 eV
$\Delta \theta_b$	$\pm 2,5^\circ$	$\pm 0,75^\circ$
$\Delta \theta_a$	$\pm 0.25^\circ$	$\pm 1,5^\circ$
ΔK	$\pm 0,02$ u.a.	$\pm 0,12$ u.a.
$\Delta \theta_K$	$\pm 1^\circ$	$\pm 6,5^\circ$

Tableau 4.1: Paramètres expérimentaux utilisés à Orsay et à Adelaïde pour les expériences sur le Ne.

Les mesures sont comparées aux résultats théoriques de quatre modèles. Il s'agit de modèles qui utilisent 'la première approximation de Born' comme les modèles DWBA et DWB1-RM¹ et des modèles qui incluent des effets d'ordre supérieur comme les modèles DWB2-RM², BBK, CCC et DWBA-G³.

¹ DWB1-RM est le modèle DWBA-RM mais en appliquant la première approximation de Born à la matrice R [Bartschat *et al*, 1987].

² DWB2-RM est le modèle DWBA-RM mais en appliquant la deuxième approximation de Born à la matrice R [Reid *et al*, 1998].

³ DWBA-G est le modèle DWBA décrit dans le chapitre 1 mais corrigé par le facteur Gamow pour inclure les effets de l'interaction post-collisionnelle (PCI) entre les deux électrons de l'état final [Kheifets *et al*, 2008].

4. A.2 Résultats et discussions

Avant d'aborder toute prise de données sur le néon, et dans le but de tester la validité de la procédure de mesure des deux dispositifs expérimentaux, des expériences complémentaires ont été faites sur l'hélium dans les mêmes conditions cinématiques que celles du Ne (à l'exception du simple réglage de l'énergie incidente). Ces mesures sont similaires à celles discutées dans le chapitre 3 [Staicu Casagrande *et al*, 2008]. Nous nous sommes évidemment assurés à chaque fois que les nouvelles mesures (de test) sont en excellent accord avec les anciennes (du chap. 3).

La figure 4.A.1 montre les résultats expérimentaux obtenus à Orsay et à Adelaïde pour la simple ionisation de l'He. Les deux expériences sont en excellent accord entre elles et avec le résultat du modèle CCC, modèle qui est communément admis dans la littérature comme donnant une très bonne description de la simple ionisation de l'He. En particulier, la forme des distributions et le décalage ou shift du lobe binaire de quelque $\sim 8^\circ$ de la direction du transfert sont bien reproduits. Ce shift est prévu lorsque la première approximation de Born n'est pas suffisante pour décrire l'ionisation ([Ehrhardt *et al*, 1986], [Lahmam-Bennani, 1991]). Nous concluons de ce résultat que notre procédure expérimentale peut être appliquée avec confiance pour l'ionisation des autres cibles étudiées, Ne et N₂, dans les mêmes conditions cinématiques que celles utilisées pour He.

Dans le but de comparer les résultats des autres modèles théoriques avec celui de notre 'référence' CCC, nous avons tracé sur la même figure 4.A.1 le résultat du modèle DWB1-RM. Pour des raisons de clarté le résultat DWBA n'est pas montré sur la figure puisqu'il est très semblable à celui de DWB1-RM. En fait, les modèles DWBA et DWB1-RM conduisent pratiquement à la même forme des distributions angulaires que le modèle CCC et n'en diffèrent en magnitude que de seulement 14% et 8%, respectivement. Cependant, contrairement à CCC, les deux modèles DWBA et DWB1-RM ne prévoient pas de shift du lobe binaire par rapport à la direction de \vec{K} et sous-estiment légèrement l'intensité de recul. Ces observations changent très peu lorsqu'on compare avec le modèle DWB2-RM (tracé aussi sur la figure 4.A.1). Cela signifie que la contribution des effets de second ordre dans l'ionisation simple de l'hélium est faible sous ces conditions cinématiques.

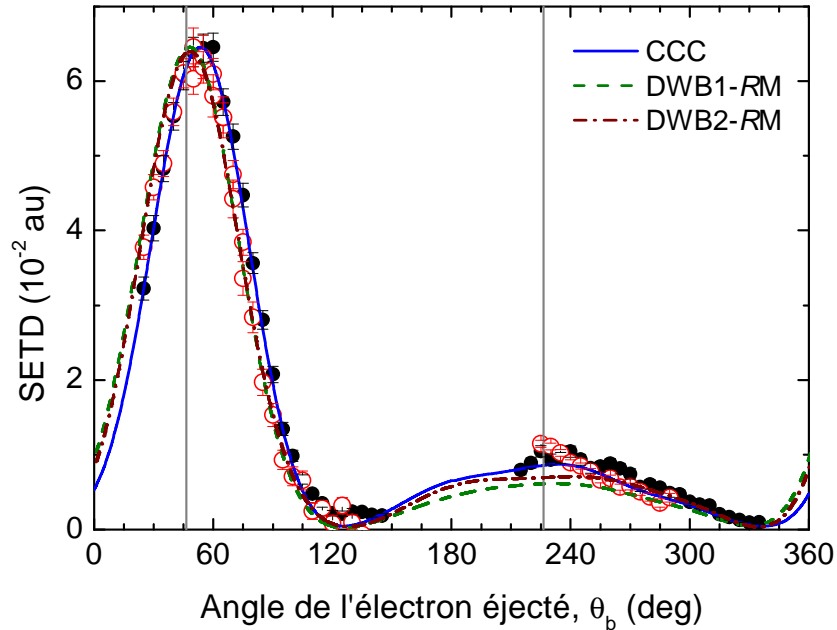


Figure 4.A.1: Sections efficaces différentielles triples de He pour les paramètres expérimentaux suivants : $E_0 = 598.6$ eV, $E_a = 500$ eV, $E_{ej} = 74$ eV et $\theta_a = -6^\circ$. Les deux traits verticaux représentent la direction du transfert et sa direction opposée. La courbe pleine en bleu correspond au modèle CCC (échelle absolue), les deux courbes pointillées en vert et rouge correspondent aux deux modèles théoriques DWB1-RM et DWB2-RM, respectivement. Le modèle DWBA-G n'est pas représenté sur la figure pour des raisons de clarté puisqu'il coïncide quasi-exactement avec le résultat CCC après multiplication par un facteur 2,23. Les mesures sont représentées par les cercles pleins noirs (Orsay) et les cercles creux rouges (Adelaïde). L'ensemble est normalisé dans la région du binaire, les deux modèles DWB1-RM et DWB2-RM sont multipliés par 0,92.

D'autre part, si nous utilisons la version DWBA-G du modèle DWBA (corrigé par le facteur de Gamow), nous trouvons un accord presque parfait avec CCC, le modèle référence, tant en ce qui concerne la forme des distributions angulaires que le décalage des lobes. (Par souci de clarté, le modèle DWBA-G n'est pas tracé sur la figure 4.A.1). Cependant, le facteur de Gamow paraît détruire l'échelle absolue, puisqu'il faut multiplier DWBA-G par un facteur 2,23 pour le normaliser avec CCC. Ceci prouve que les effets post-collisionnels entre les deux électrons sortants durant l'ionisation de He dans ces conditions cinématiques ne sont pas négligeables.

Considérons maintenant le cas du Ne. Les sections efficaces triplement différentielles théoriques et expérimentales correspondant à l'ionisation de Ne-2p et Ne-2s sont montrées dans les figures 4.A.2 et 4.A.3, respectivement. Pour des raisons de clarté, les modèles qui

utilisent la première approximation de Born sont groupés dans la partie (a) et les autres qui utilisent des approximations d'ordre supérieur sont groupés dans la section (b) des deux figures. Dans la suite, nous allons organiser la discussion en deux parties, dans la première nous comparons les expériences d'Orsay et d'Adelaïde entre elles et dans la deuxième les expériences aux théories.

a- Comparaison expérience (Orsay) - expérience (Adelaïde)

La comparaison entre les résultats des deux expériences est un peu contrastée. Pour l'ionisation des deux couches 2p et 2s du Ne, nous remarquons un bon accord général pour les deux lobes binaires et reculs avec des similarités et des différences.

Concernant les similarités, nous observons que le lobe binaire obtenu dans les deux expériences d'Orsay et d'Adelaïde pour l'ionisation des deux couches, est décalé de quelques degrés de la direction du transfert \vec{K} . En plus, nous notons dans le cas de la couche 2s le même rapport binaire sur recul pour les deux expériences.

Par contre, il existe deux points de différence entre les données des deux expériences. D'une part, le lobe de recul dans les expériences d'Adelaïde est dirigé dans la direction de transfert $-\vec{K}$ pour les deux couches 2p et 2s, alors que dans celles d'Orsay les lobes de recul sont décalés vers les grands angles. D'autre part, le résultat de Ne-2s (mais pas Ne-2p) présente, dans l'expérience d'Adelaïde, un minimum à environ 90-95° et un maximum secondaire à environ 120° alors que le résultat d'Orsay présente un épaulement à ces endroits. Il est difficile de préciser l'origine de ces différences : les deux expériences à Adelaïde et à Orsay ont été répétées à plusieurs reprises et à chaque fois, elles sont précédées et suivies par des mesures de simple ionisation sur l'He sous les mêmes conditions, expériences qui donnent toujours un excellent accord avec CCC. Nous avons essayé d'interpréter ces différences en les analysant de plusieurs façons :

- On pourrait penser que l'origine du minimum à $\sim 90^\circ$ dans le cas du Ne-2s est reliée au nœud dans la densité de probabilité dans l'espace des moments $\rho(p)$ de l'état 2s du Ne. Mais cette explication ne peut être la bonne car la fonction $\rho(p)$ présente un nœud à environ $p = 4$ u.a. [Lahmam-Bennani *et al*, 1986] alors que dans notre travail p varie entre 1,3 u.a. et 3,4 u.a.

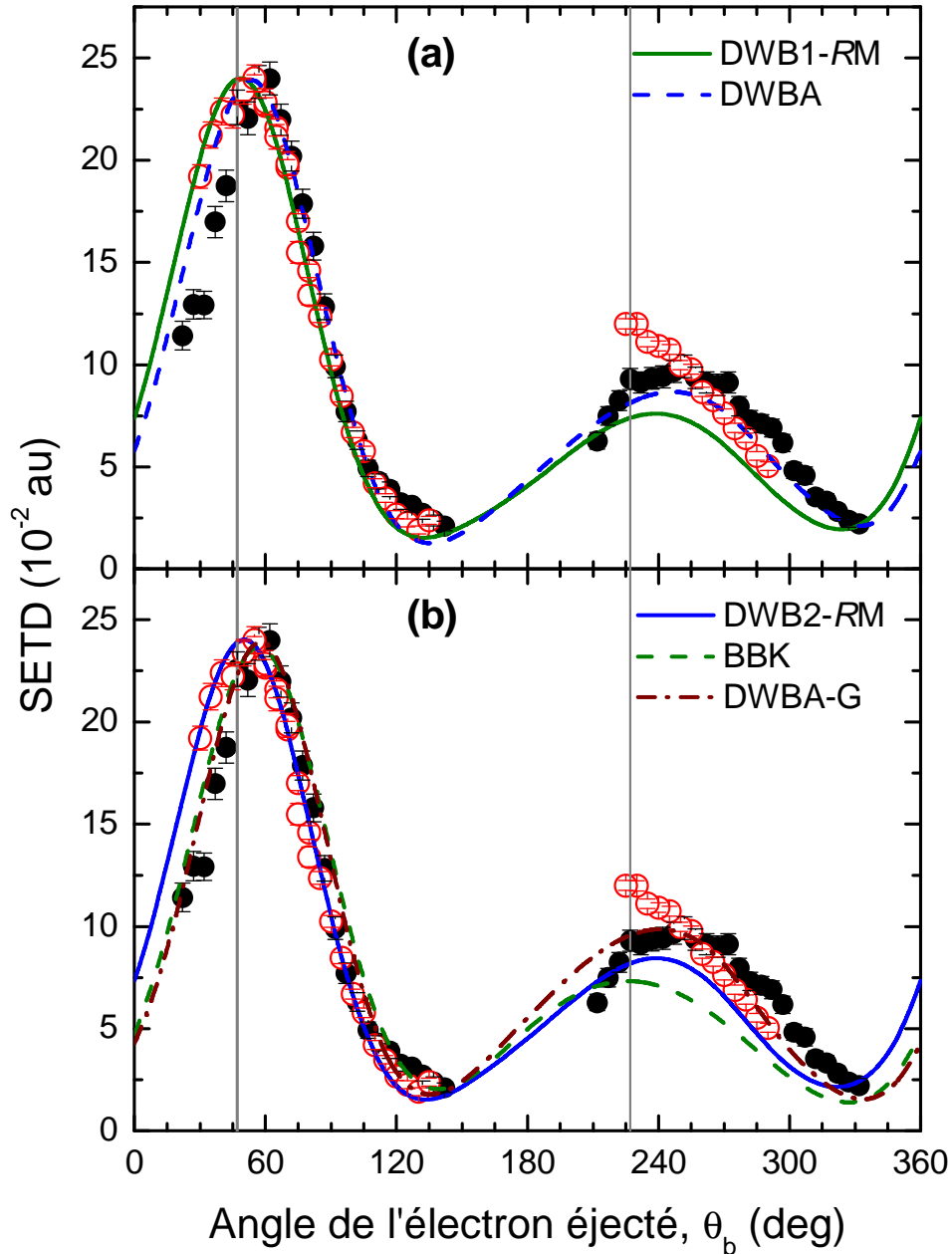


Figure 4.A.2: Sections efficaces différentielles triples de Ne-2p pour les paramètres expérimentaux suivants : $E_0 = 595.6$ eV, $E_a = 500$ eV, $E_{ej} = 74$ eV et $\theta_a = -6^\circ$. Les deux traits verticaux représentent la direction du transfert et sa direction opposée. Graphe (a) : la courbe pleine verte et celle bleue pointillée représentent les résultats des deux modèles DWB1-RM (échelle absolue) et DWBA, respectivement. Graphe (b) : la courbe pleine bleue, celle pointillée verte et celle rouge représentent les résultats théoriques DWB2-RM, BBK et DWBA-G, respectivement. Les mesures sont représentées par les cercles pleins noirs (Orsay) et les cercles creux rouges (Adelaïde). L'ensemble est normalisé dans la région du binaire, les modèles DWBA-G, DWB2-RM et BBK sont multipliés respectivement par 1.73, 1.06 et 1.45.

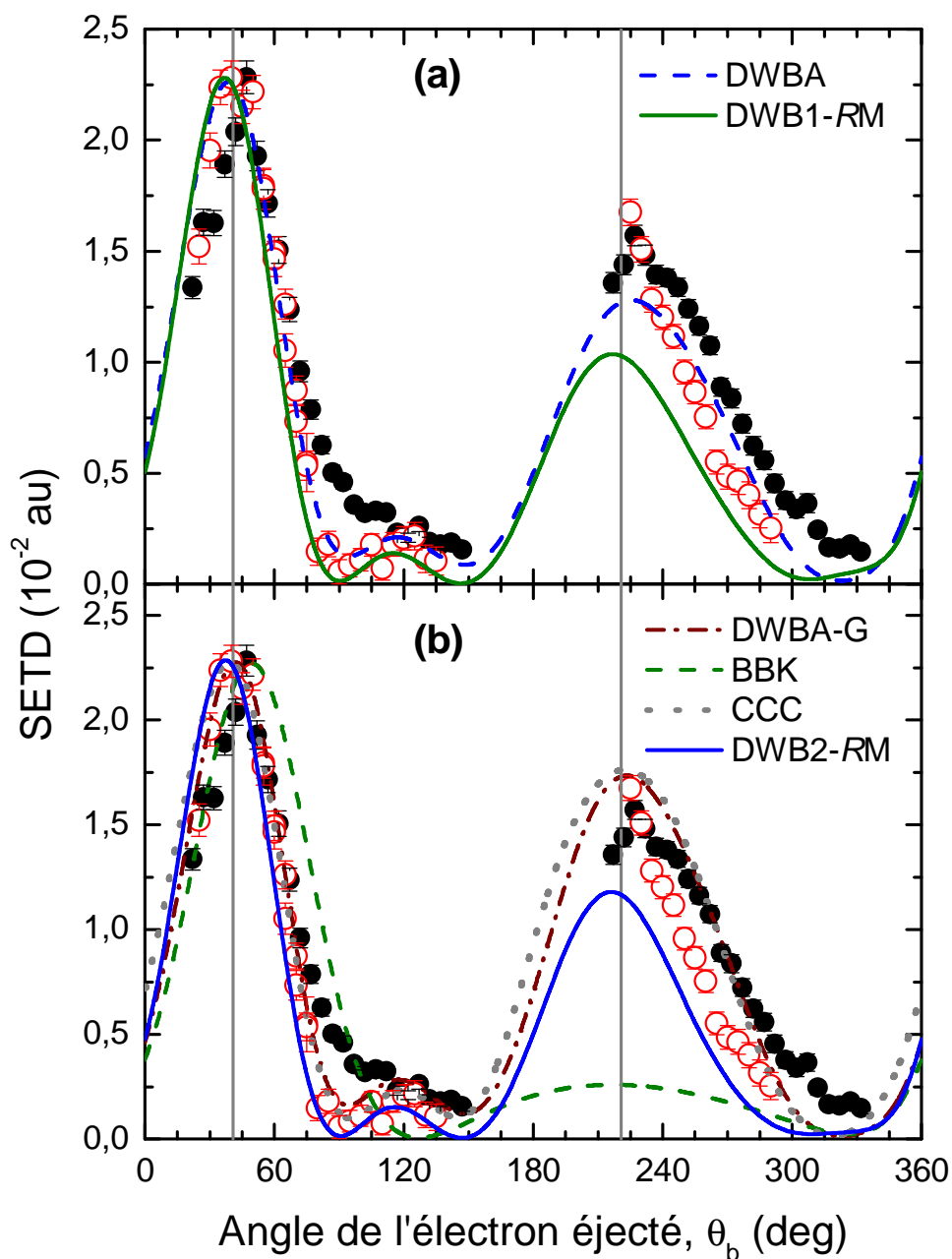


Figure 4.A.3: Identique à la figure 4.A.2, mais pour $Ne-2s$, avec $E_0 = 622,5$ eV. Graphe (a) : la courbe pleine verte et celle bleue pointillée représentent les résultats des deux modèles DWB1-RM (échelle absolue) et DWBA, respectivement. Graphe (b) : les courbes rouge, verte, gris et celle bleue représentent respectivement les résultats théoriques DWBA-G, BBK, CCC et DWB2-RM. L'ensemble est normalisé dans la région du binnaire, les modèles DWBA-G, DWB2-RM, BBK et CCC sont multipliés respectivement par 1.35, 1.01, 0.39 et 0.77.

- On pourrait également penser que cette différence (minimum vs épaulement) vient de la résolution angulaire plus faible dans l'expérience d'Orsay ($\Delta\theta_b = 5^\circ$) qu'à Adelaïde ($\Delta\theta_b = 1,5^\circ$). Nous avons convolué à ce propos les données d'Adelaïde avec une gaussienne de largeur à mi-hauteur 5° : aucune variation significative n'est observée. Il faudrait en fait convoluer avec une gaussienne de largeur à mi-hauteur voisine de 45° pour pouvoir reproduire une forme qui ressemble à l'épaulement dans les données d'Orsay ! Une telle largeur est complètement déraisonnable.
- D'autre part, nous notons que notre résolution angulaire pour l'électron diffusé ($\Delta\theta_a = \pm 0,25^\circ$) est meilleure que celle d'Adelaïde ($\Delta\theta_a = \pm 1,5^\circ$). Ceci se traduit en une résolution du moment de transfert $\Delta K = \pm 0,02 u. a.$ et $\pm 0,12 u. a.$ et une résolution sur la direction de \vec{K} de $\Delta\theta_K = \pm 1^\circ$ et $\Delta\theta_K = \pm 6,5^\circ$ respectivement dans le cas d'Orsay et d'Adelaïde. Cependant, nous ne voyons pas comment des résolutions ΔK et $\Delta\theta_K$ différentes pourraient se traduire par un minimum à la place d'un épaulement.
- La résolution en énergie de l'expérience d'Orsay est un peu plus faible que celle d'Adelaïde (voir tableau 4.1), cependant elle est suffisante pour garantir que le signal mesuré provient uniquement de l'ionisation de la couche 2s du Ne, laissant l'ion dans son état fondamental $2s2p^6$, et que la contribution des états satellites voisins $2s^22p^43d$, est négligeable [Samardzic *et al*, 1993]. Il est donc difficile, ici encore, de relier l'absence de minimum dans les mesures d'Orsay à la résolution énergétique modeste utilisée.

La question sur l'origine de ces différences entre les deux expériences reste toujours ouverte. Seule une troisième expérience, indépendante, pourra clarifier la situation.

b- Comparaison expériences - théories

Les résultats expérimentaux obtenus à Orsay et Adelaïde concernant l'ionisation du Ne-2p (figure 4.A.2) et Ne-2s (figure 4.A.3) sont comparés avec les modèles théoriques cités ci-dessus. Pour des raisons de clarté, les modèles qui utilisent la première approximation de Born sont groupés dans la partie (a) et les autres qui utilisent des approximations d'ordre supérieur sont groupés dans la section (b) des deux figures. Contrairement au cas de l'He où le modèle CCC est pris comme référence et son échelle est considérée comme l'échelle absolue, nous avons décidé de présenter les résultats du Ne en utilisant l'échelle absolue du modèle DWB1-RM pour trois raisons : la première est que le modèle CCC est bien reconnu pour reproduire les données concernant l'hydrogène atomique et l'hélium, mais dans ce travail il est étendu pour la première fois au cas d'un atome plus complexe. La deuxième est

que seul le résultat de CCC décrivant l'ionisation de la couche 2s est disponible et pas celui de la couche 2p. La troisième est que l'échelle absolue du modèle DWB1-RM dans le cas de l'He (figure 4.A.1) est très proche de celle donnée par le modèle CCC. En conséquence, toutes les données expérimentales du Ne ainsi que tous les autres résultats théoriques sont normalisés au modèle DWB1-RM au maximum du lobe binaire, comme indiqué dans la légende de chaque figure.

Bien que les mesures expérimentales de ce travail soient toujours obtenues sur une échelle relative, nous pouvons remarquer que les différents modèles diffèrent entre eux en magnitude absolue par d'importants facteurs. En effet, les deux modèles du premier ordre (DWBA et DWB1-RM) trouvent à peu près la même magnitude absolue dans le cas du Ne-2p, tandis qu'ils diffèrent d'un facteur 0,65 dans le cas de l'orbitale 2s. La correction par le facteur Gamow dans le modèle DWBA-G influe sur la magnitude des SETD pour les deux orbitales 2p et 2s (mais nous verrons plus loin que ce modèle conduit à un meilleur accord avec l'expérience pour la forme des distributions angulaires). Les résultats de CCC pour la couche 2s sont proches de ceux fournis par DWBA. Par rapport à DWB1-RM, le modèle BBK produit un lobe binaire plus petit (respectivement plus grand) dans les deux cas du Ne-2p ou Ne-2s. Enfin, l'inclusion des contributions du second ordre dans l'interaction projectile-cible (modèle DWB2-RM), influe très peu sur la magnitude des sections efficaces. Au vu de ces différences dans l'échelle absolue des différents modèles théoriques, il serait certainement souhaitable de disposer de nouvelles données expérimentales où l'échelle absolue serait déterminée, comme cela a été par exemple réalisé par [Daoud *et al*, 1985], afin d'aider à distinguer entre les différents modèles. Cependant, la procédure est loin d'être une question évidente.

Concernant la forme des distributions angulaires de Ne-2p (figure 4.A.2), nous remarquons qu'il y a un accord global entre toutes les théories que ce soit en les comparant entre elles ou avec les deux données expérimentales. Maintenant, si nous regardons plus en détail la région du lobe de recul où les expériences montrent quelques différences (discutées ci-dessus), nous pouvons noter que :

- i. les deux modèles BBK et DWB1-RM sous-estiment l'intensité du recul.
- ii. Le modèle DWB2-RM améliore un peu l'intensité du recul indiquant (comme dans le cas de He) que les effets de second-ordre dans l'interaction projectile-cible à faible distance sont faibles sous ces conditions cinématiques.

- iii. Le modèle DWBA est plus proche des deux expériences, surtout de celle d'Orsay tenant compte de la position du lobe de recul.
- iv. En corrigeant avec le facteur Gamow, le modèle DWBA-G donne un meilleur accord avec les deux expériences. Ici encore, il reproduit mieux l'expérience d'Orsay concernant la position du lobe de recul.

La situation paraît plus compliquée pour les distributions angulaires de Ne-2s (figure 4.A.3) où plusieurs différences entre les théories sont observées. Pour la position angulaire du lobe binaire, les modèles DWB1-RM, DWB2-RM, DWBA et CCC ne prévoient pas de décalage par rapport à la direction de $+\vec{K}$. Par contre, le modèle DWBA-G trouve un décalage de quelques degrés, décalage corroboré par les deux expériences, tandis que le modèle BBK prévoit un décalage plus grand. Dans ce contexte, il est important de noter que ces deux derniers modèles incluent les effets PCI de deux manières différentes: le modèle BBK tient compte de ces effets à toutes les distances via les fonctions d'ondes coulombiennes alors que le modèle DWBA-G inclut les interactions entre l'électron diffusé et l'électron éjecté à travers le facteur Gamow. (Ces interactions ne sont généralement pas incluses dans le modèle DWBA). Ces observations soulignent l'importance d'inclure les effets PCI dans les calculs théoriques pour mieux reproduire les expériences.

D'autre part, tous les modèles théoriques, sauf BBK, sont en meilleur accord avec les données d'Adelaïde dans la reproduction du maximum secondaire à $\sim 120^\circ$ dans la région du lobe binaire. Pour le lobe de recul, les modèles DWB1-RM, DWB2-RM, BBK et CCC ne sont pas décalés de la direction $-\vec{K}$ alors que le modèle DWBA, et encore plus DWBA-G, sont décalés vers les grands angles, ce qui les met en meilleur accord avec les données d'Orsay. Le rapport d'intensité binaire sur recul observé dans les deux expériences est bien décrit par les modèles CCC et DWBA-G, mais ces deux modèles reproduisent mieux la forme de la distribution angulaire du lobe de recul mesuré à Orsay.

Enfin, précisons que le succès du modèle DWBA-G dans la reproduction des expériences est attribué à l'inclusion des effets PCI via le facteur de Gamow. Cependant, ces effets ne peuvent pas être le seul ingrédient qui entre en ligne de compte puisque le modèle BBK inclut lui aussi les effets PCI mais il échoue dans la description du recul dans le cas du Ne-2s. Cet échec est attribué au fait que, dans la modélisation du calcul BBK pour la couche 2s, la présence des électrons 2p est complètement négligée. Ceci est différent du cas de la couche 2p (figure 4.A.2) où il semble qu'il n'est pas important d'inclure la présence des électrons de la couche 2s.

Section 4.B : Mesures (e,2e) sur N₂

La deuxième partie de ce chapitre concerne l'ionisation de l'azote moléculaire dans les mêmes conditions cinématiques que celles de l'ionisation du Ne discutée dans la section précédente. Les mesures sont comparées avec le résultat des deux modèles les plus sophistiqués dans la description de l'ionisation des cibles moléculaires, FBA-TCC et M3DW-OAMO, dont le principe général a été donné dans le chapitre 1.

4. B.1 Motivation

La plupart des études plus ou moins récentes (peu nombreuses) consacrées à l'ionisation des molécules diatomiques comme H₂ et N₂ ([Chérid *et al*, 1989] et [Hussey *et al*, 2002]) ou triatomique comme H₂O ou CO₂ ([Milne-Brownlie *et al*, 2004] et [Kaiser *et al*, 2007]) ont été réalisées avec une énergie incidente faible ou moyenne et une énergie éjectée faible. Dans ces conditions, les résultats des deux modèles FBA-TCC et M3DW-OAMO sont en accord raisonnable avec les expériences. En outre, le modèle TCC a été testé valide [Stia *et al*, 2002] dans la reproduction des données de l'expérience faite par l'équipe d'Orsay sur H₂ à haute énergie (~4 keV) [Chérid *et al*, 1989]. L'objectif principal de ce travail est de tester ces deux modèles dans des conditions plus sévères, afin d'analyser l'étendue du domaine de validité des approximations utilisées dans chaque modèle. Pour cela:

- Nous considérons l'ionisation non seulement des orbitales moléculaires externes mais encore d'une orbitale interne. En effet, nous savons que pour une cible atomique l'ionisation des couches internes représente, beaucoup plus que l'ionisation des couches externes, un test sévère pour la théorie, en raison de la participation active du noyau dans le processus de l'ionisation. La molécule N₂ est un bon candidat pour ce test car elle possède une orbitale interne $2\sigma_g$ énergétiquement bien séparée des orbitales voisines. En plus, N₂ a l'avantage d'être facilement manipulable expérimentalement et c'est l'une des molécules les plus étudiées.
- Nous utilisons les mêmes conditions cinématiques particulières discutées plus haut, caractérisées par un faible transfert de moment et un grand transfert d'énergie du projectile à la cible. Ceci se traduit par le transfert d'un moment important à l'ion résiduel qui jouera ainsi un rôle considérable dans le processus de collision.

4. B.2 Expérience

Nous avons mesuré la distribution angulaire des sections efficaces (relatives) triplement différentielles de simple ionisation pour les orbitales moléculaires externes $3\sigma_g$ (potentiel d'ionisation $PI = 15,6$ eV), $1\pi_u$ ($PI = 16,7$ eV) et $2\sigma_u$ ($PI = 18,75$ eV) de la molécule N_2 . La résolution énergétique de notre système (~ 4 eV) ne permet pas de séparer expérimentalement ces orbitales. Par conséquent, en réglant notre bilan énergétique pour se fixer sur le PI de l'orbitale $3\sigma_g$, et en supposant que la fonction de distribution énergétique est une gaussienne de largeur à mi-hauteur 4 eV, nous enregistrons simultanément le signal ($e,2e$) de l'orbitale $3\sigma_g$ avec une efficacité 100% et celui dû aux contributions des orbitales voisines, $1\pi_u$ et $2\sigma_u$, avec des efficacités de 84% et 34%, respectivement. Les mesures ont été faites pour une énergie de l'électron incident E_0 égale à 589 eV, celle de l'électron diffusé E_a égale à 500 eV et celle de l'électron éjecté E_{ej} égale à 74 eV. L'angle de l'électron diffusé est fixé à $\theta_a = \pm (6^\circ \pm 0.25^\circ)$. Des résultats similaires pour l'orbitale moléculaire interne $2\sigma_g$ ($PI = 37.9$ eV, $E_0 = 612$ eV, $E_a = 500$ eV, $E_{ej} = 74$ eV) ont été obtenus. Cette orbitale est bien isolée des autres mais, étant une orbitale interne, la section efficace d'ionisation correspondante est sensiblement plus faible.

Nous avons vérifié la reproductibilité de nos résultats en mesurant répétitivement chaque distribution angulaire à plusieurs reprises. Les distributions angulaires discutées dans la section suivante sont donc une moyenne statistique de ces différentes mesures.

Par ailleurs, et comme déjà mentionné dans le paragraphe 4.A.2, nous rappelons que dans le souci de multiplier les tests de validité de nos mesures, des expériences similaires sont faites dans les mêmes conditions sur l'He avant et après chaque expérience sur N_2 pour s'assurer toujours de l'excellent accord avec le modèle CCC.

4. B.3 Résultats et discussions

La figure 4.B.1 et 4.B.2 montrent les sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation des couches externes et de la couche interne $2\sigma_g$, respectivement. Nos données sont comparées aux résultats des deux modèles FBA-TCC et M3DW-OAMO (cf. chapitre 1).

Nous discutons tout d'abord le cas de la figure 4.B.1. Comme mentionné ci-dessus, les données incluent en fait les contributions des trois orbitales externes $3\sigma_g$, $1\pi_u$ et $2\sigma_u$ avec la proportion 1, 0,84 et 0,34 respectivement. Pour le modèle FBA-TCC, les résultats théoriques pour chaque orbitale sont calculés séparément et le résultat final montré sur la figure 4.B.1 est

la somme pondérée des trois résultats en respectant la proportion de contribution de chaque orbitale. Concernant l'approximation OAMO, les auteurs [Gao *et al*, 2005] ont montré qu'elle n'est pas valide pour les états de symétrie u de l'orbitale, donc le résultat du modèle M3DW-OAMO montré sur la figure 4.B.1 inclut seulement la contribution de $3\sigma_g$.

Compte tenu de la complexité du processus d'ionisation moléculaire, la comparaison entre l'expérience et les deux théories (figure 4.B.1) est assez satisfaisante puisque les deux théories reproduisent raisonnablement la forme du lobe binaire. Globalement, l'accord avec l'expérience est meilleur avec les résultats du modèle TCC, en particulier pour la description du lobe de recul. Cependant, nous observons des différences notables avec les résultats expérimentaux, ces différences sont analysées dans la suite :

- Les deux modèles FBA-TCC et M3DW-OAMO prévoient un lobe binaire aligné dans la direction du transfert, θ_K . Ce comportement est prévu pour le modèle TCC puisqu'il utilise l'approximation du premier ordre. Le modèle M3DW inclut dans la description de l'état final les effets PCI entre les deux électrons du continuum. Une conséquence de ces effets est la rotation des lobes vers l'arrière, mais vu la grande différence entre l'énergie de l'électron diffusé et celle de l'électron éjecté, le PCI n'a qu'une légère influence sur la position des lobes. En revanche, le lobe binaire mesuré est décalé vers les grands angles d'environ $\sim 12^\circ$. Ce shift est similaire à celui que nous avons vu dans le cas de He (figure 4.A.1) et confirmé par le modèle CCC. Le lobe binaire mesuré a une largeur à mi-hauteur d'environ 54° , alors que les deux théories prévoient un lobe binaire plus large (72°) pour FBA-TCC ou moins large (46°) pour M3DW-OAMO. De ce point de vue, ce dernier modèle semble plus proche de l'expérience que le modèle TCC.
- La distribution de l'intensité du lobe de recul donnée par le modèle TCC est symétrique, contrairement à la distribution asymétrique observée dans l'expérience. En plus, l'approche TCC sous-estime la magnitude du lobe de recul par rapport au lobe binaire et ne reproduit pas la rotation de $\sim 12^\circ$ de ce lobe vers les grands angles.
- L'intensité du recul fournie par le modèle M3DW-OAMO est beaucoup plus faible que dans l'expérience. Gao *et al* ont montré analytiquement [Gao *et al*, 2005] que l'approximation OAMO est valide pour les faibles valeurs du moment transféré à l'ion ($\vec{q} = \vec{K} - \vec{k}_b$), typiquement inférieures à l'unité ($q < 1$ u.a.). Dans les conditions

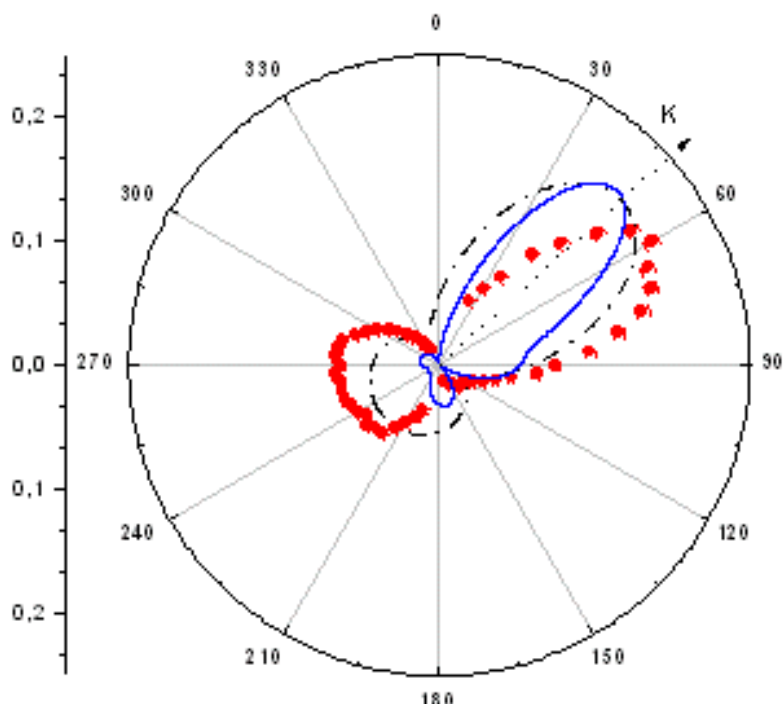


Figure 4.B.1: Tracé de la somme pondérée (voir §4.A.2) des SETD de l'ionisation des orbitales $3\sigma_g$, $1\pi_u$ et $2\sigma_u$ de N_2 . Les paramètres expérimentaux sont : $E_0 = 589,6\text{eV}$, $E_a = 500\text{eV}$, $E_{ej} = 74\text{eV}$ et $\theta_a = -6^\circ$. La flèche indique la direction du vecteur \vec{K} ($\theta_K = 49^\circ$). La courbe pointillée noire représente le résultat du calcul FBA-TCC (somme pondérée des trois orbitales) et la courbe pleine bleue représente celui de M3DW-OAMO (contribution de l'orbitale $3\sigma_g$ seule). Expérience et théories sont tous normalisées au maximum du lobe binaire. L'échelle absolue montrée sur la figure est celle du modèle TCC, les données du modèle M3DW étant multipliées par 4,6.

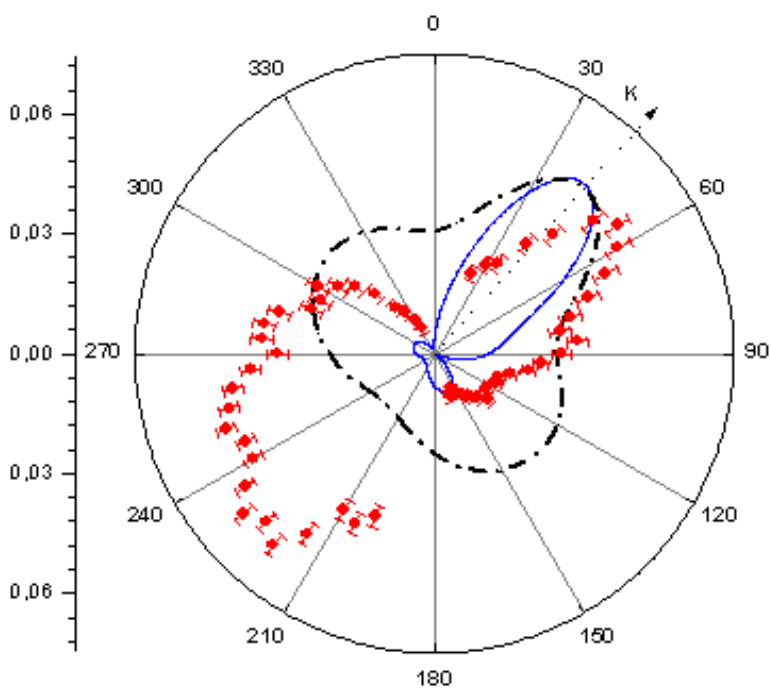


Figure 4.B.2: Identique à la figure 4.B.1, mais pour l'ionisation de l'orbitale interne $2\sigma_g$. $E_0 = 612\text{ eV}$ et $\theta_K = 43^\circ$. L'échelle absolue montrée sur la figure est celle du modèle TCC, les données du modèle M3DW étant multipliées par 0,24.

cinématiques de nos expériences, le moment de transfert à l'ion varie entre 1,5 et 3,2 u.a. ce qui met la validité de l'approximation OAMO en question dans notre cas. Ces mesures représentent donc un test sévère de l'approximation OAMO, et c'est précisément une des raisons qui ont motivé ce travail.

Nous remarquons que la valeur minimale de q est obtenue lorsque l'électron éjecté est émis parallèlement à la direction de \vec{K} , c'est à dire proche du lobe binaire, alors que la valeur maximale de q est obtenue lorsque l'électron éjecté est émis parallèlement à la direction de $-\vec{K}$, c'est à dire proche du lobe de recul. Par conséquent, on s'attend à ce que l'approximation OAMO soit en meilleur accord vers le lobe binaire et en mauvais accord pour le recul, et c'est exactement ce qu'on observe dans la figure 4.B.1.

En fait, bien que la sous-estimation de l'intensité relative du lobe de recul par ce modèle peut être en partie attribuée au fait que la contribution des orbitales $1\pi_u$ et $2\sigma_u$ n'est pas incluse dans ce modèle, une partie significative de ce désaccord est attribuée à l'approximation OAMO dans les conditions de nos expériences.

- Il est important de noter que l'échelle absolue obtenue par le modèle TCC pour l'ionisation de l'orbitale $3\sigma_g$ seule est ~ 3 fois plus grande que celle obtenue par le modèle M3DW-OAMO. Mais, puisque les données expérimentales sont obtenues en échelle relative, il est difficile de conclure sur les vertus respectives de ces modèles.

La plupart de ces observations reste valable dans le cas de l'ionisation de la couche interne $2\sigma_g$ (figure 4.B.2). En particulier,

- l'échelle absolue du modèle TCC est ~ 4 fois plus faible que celle obtenue par le modèle M3DW-OAMO.
- les deux calculs produisent des lobes qui ne sont pas décalés de la direction du transfert, tandis que le lobe mesuré est décalé vers les grands angles de $\sim 8^\circ$.
- le lobe binaire mesuré a une largeur à mi-hauteur d'environ 58° , alors que les deux théories prévoient un lobe binaire plus large (70°) pour FBA-TCC et moins large (48°) pour M3DW-OAMO.
- Cependant, l'observation la plus marquante concerne la distribution de l'intensité du recul. En effet, le modèle M3DW-OAMO trouve une faible intensité de recul tandis que le modèle TCC trouve une très large structure avec un minimum peu prononcé dans la direction de $-\vec{K}$. En revanche, les mesures expérimentales montrent une très grande intensité de recul qui n'est reproduite par aucun des deux calculs. Un

tel comportement, non observé dans le cas de l'ionisation des orbitales externes (figure 4.B.1), reflète le rôle important que joue la structure complexe d'une cible moléculaire. Dans le cas des cibles atomiques, l'ionisation des couches internes produit des lobes de recul importants (comparés à des couches externes) [Lahmam-Bennani, 1991], ce qui est toujours expliqué comme étant la signature de la présence d'une forte interaction de l'électron éjecté avec l'ion résiduel, qui augmente dans le cas d'une cible multiélectronique : nos données expérimentales confirment une telle tendance pour une cible moléculaire.

L'incapacité des deux calculs à reproduire complètement les distributions expérimentales, surtout l'intensité et la forme du lobe de recul, montre le besoin d'une théorie plus fine qui décrit correctement la simple ionisation de la molécule N_2 . Nous rappelons que le modèle TCC a été testé valide [Stia *et al*, 2002] dans la reproduction des données (e,2e) sur H_2 à haute énergie (~ 4 keV) [Chérid *et al*, 1989], donc sa mise en défaut dans notre cas peut être attribuée d'une part à la différence d'énergie d'impact de nos conditions et d'autre part, à la complexité de la molécule N_2 par rapport à H_2 et donc à la participation plus active de l'ion résiduel dans le processus de la collision. D'autre part, le modèle M3DW-OAMO reproduit bien la forme du lobe binaire expérimental (mais pas sa position), son lobe de recul trop petit étant attribué à la défaillance de l'approximation OAMO. Clairement, l'approximation qui consiste à moyennner sur les orientations moléculaires dans l'état initial n'est pas adaptée aux cas étudiés dans ce travail.

4.2 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié, par des expériences (e,2e), la simple ionisation en couche interne et externe, pour deux cibles atomique et moléculaire, Ne et N_2 . Nous avons présenté la section efficace triplement différentielle dans des nouvelles conditions cinématiques qui permettent de transférer un moment important à l'ion résiduel. Les mesures sont comparées aux modèles les plus élaborés dans le domaine, et, dans le cas du Ne, les mesures sont faites dans deux laboratoires différents. Dans le cas du Ne et N_2 , avant et après chaque expérience, nous avons validé notre procédure expérimentale par des mesures similaires sur l'He et en s'assurant de l'excellent accord avec le modèle CCC.

Dans le cas du Ne-2p, nous avons trouvé un accord raisonnable pour la forme des distributions angulaires en comparant avec les résultats des modèles théoriques. Pour le Ne-

2s, la comparaison expérience-expérience a montré deux différences, la première concerne la présence d'un épaulement ou d'un maximum à $\sim 120^\circ$ et la deuxième réside dans le décalage angulaire de la position du lobe de recul. La comparaison entre la théorie et l'expérience a montré aussi l'importance d'inclure les effets PCI pour mieux reproduire l'intensité relative et la position des lobes.

Dans le cas de N_2 , nous avons mesuré la section efficace triplement différentielle de la simple ionisation pour les orbitales moléculaires externes $3\sigma_g$, $1\pi_u$ et $2\sigma_u$. Des résultats similaires pour l'orbitale moléculaire interne $2\sigma_g$ ont été obtenus. Le résultat est comparé à deux modèles les plus élaborés dans le domaine. Un accord raisonnable est observé dans la région du binaire mais des différences importantes sont trouvées dans la région du recul entre l'expérience et la théorie et entre les deux théories entre elles. L'origine de ce désaccord est en partie due au choix des conditions cinématiques de nos expériences qui constituent un test sévère pour les deux modèles puisqu'elles impliquent une interaction forte de l'ion résiduel dans le processus de la collision. Ces différences montrent le besoin d'un raffinement des modèles théoriques pour mieux décrire le processus d'ionisation des cibles moléculaires, mais également le besoin de plus de données expérimentales, si possible avec une meilleure résolution énergétique et obtenues sur une échelle absolue. Dans ce but, l'extension des expériences à d'autres molécules est en cours, et des premiers résultats sont d'ores et déjà obtenus sur la simple ionisation de CO_2 et CH_4 . La discussion de ces résultats ne rentre pas dans le cadre de la présente thèse.

4.3 Bibliographie

- Bartschat K and Burke P G, J. Phys. B, **20**, 3191 (1987)
- Brion C E, Cooper G, Zheng Y, Litvinyuk I V and McCarthy I E, Chem. Phys., **270**, 13 (2001)
- Burke P G and Robb W D, Adv. At. Mol. Phys., **11**, 143 (1975)
- Catoire F, Staicu Casagrande E M, Nekkab M, Dal Cappello C, Bartschat K and Lahmam-Bennani A, J. Phys. B, **39**, 2827 (2006)
- Chérid M, Lahmam-Bennani A, Duguet A, Zuraes R W, Lucchese R R, Dal Cappello M C, J. Phys. B, **22**, 3483 (1989)
- Daoud A, Lahmam-Bennani A, Duguet A, Dal Cappello C and Tavard C, J. Phys. B, **18**, 141 (1985)
- Ehrhardt H, Jung K, Knoth G and Schlemmer P, Z. Phys., **1**, 3 (1986)
- Gao J F, Peacher J L and Madison D H, J. Chem. Phys., **123**, 204302 (2005)
- Haynes M A and Lohmann B, J. Phys. B, **33**, 4711 (2000)
- Hussey M J and Murray A J, J. Phys. B, **35**, 3399 (2002)
- Jung K, Schubert E, Paul D A L and Ehrhardt H, J. Phys. B, **8**, 1330 (1975)
- Kaiser C, Spieker D, Gao J F, Hussey M, Murray A and Madison D H J. Phys. B, **40**, 2563 (2007)
- Kheifets A S, Naja A, Staicu Casagrande E M and Lahmam-Bennani A, J. Phys. B, **41**, 145201 (2008)
- Lahmam-Bennani A, Duguet A and Dal Cappello C, J. Electr. Spectro. Relat. Phenom, **40**, 141 (1986)
- Lahmam-Bennani A, J. Phys. B., **24**, 2401 (1991)
- Milne-Brownlie D S, Cavanagh S J, Lohmann B, Champion C, Hervieux P A and Hanssen J, Phys. Rev. A, **69**, 032701 (2004)
- Reid R H G, Bartschat K and Raeker A, J. Phys. B, **31**, 563 (1998)
- Samardzic O, Braidwood S W, Weigold E and Brunger M J, Phys. Rev. A, **48**, 4390 (1993)
- Staicu Casagrande E M, Naja A, Mezdari F, Lahmam-Bennani A, Bolognesi P, Joulakian B, Chuluunbaatar O, Al-Hagan O, Madison D H, Fursa D V and Bray I, J. Phys. B, **41**, 025204 (2008)
- Stevenson M A and Lohmann B, Phys. Rev. A, **73**, 020701 (2006)
- Stevenson M A, Lohmann B, Bray I, Fursa D V and Stelbovics A T, Phys. Rev. A, **75**, 034701 (2007)
- Stia C R, Fojon O A, Weck P F, Hanssen J, Joulakian B and Rivarola R D, Phys. Rev. A, **66**, 052709 (2002)
- Weigold E and McCarthy I E, *Electron Momentum Spectroscopy*, (New York: Plenum) (1999)

Chapitre 5

Expériences (e,2e), (e,3-1e) et (e,3e) sur l'atome d'Argon : effet Auger

5.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous étudions la simple ionisation en couche interne 2p et la double ionisation d'une cible d'argon. La particularité de notre étude est qu'elle a été réalisée, comme cela a été fait tout au long de cette thèse, avec un choix des énergies qui permet un large transfert d'impulsion à la cible, mais aussi, dans le cas de la double ionisation, avec deux électrons éjectés de même énergie.

L'ionisation en couche 2p de l'argon a fait l'objet de plusieurs études :

Les premiers résultats (e,2e) de simple ionisation d'Ar(2p⁻¹) ont été reportés par l'équipe d'Orsay en 1984 [Lahmam-Bennani *et al*, 1984] avec une énergie incidente de ~8 keV, une énergie des électrons éjectés de 150 eV et pour différents angles de diffusion allant de 1° à 7°. Ces résultats ont été comparés à des calculs théoriques 'FBA' (cf. chap. 1), élaborés par [Grum-Grzhimailo, 1985] et [Brothers *et al*, 1986] dans le cadre de la première approximation de Born. Bien que cette approximation soit généralement exacte dans la limite des grandes énergies d'impact ($E_0 \rightarrow \infty$) et des petites valeurs du transfert de moment à la cible ($\vec{K} \rightarrow 0$, avec $\vec{K} = \vec{k}_0 - \vec{k}_a$), un grand désaccord a été trouvé en comparant l'expérience à la théorie, désaccord qui met en relief la complexité de traiter convenablement l'ionisation en couche interne.

En 1986 sont publiés [Stefani G *et al*, 1986] de nouveaux résultats de simple ionisation de la couche 2p d'Ar à 8 keV d'énergie incidente, une énergie d'éjecté plus faible (7 eV), et avec un faible transfert d'impulsion à la cible ($K = 0,75$ u.a.). Un désaccord est encore trouvé en comparant ces résultats au modèle 'PWBA¹' qui utilise des ondes planes pour modéliser les

¹ Plane Wave Born Approximation

électrons dans l'état initial et final, tout en restant dans le cadre de la première approximation de Born.

En 1991, Bickert et ses collaborateurs [Bickert *et al*, 1991] ont mesuré la section efficace triplement différentielle d'ionisation de l'Ar (2p) à des énergies incidentes plus faibles (~2,5 keV) et un plus grand transfert d'impulsion à la cible. Ces mesures ont été comparées au modèle théorique CWBA¹ qui décrit les électrons dans leur état initial et final par des ondes coulombiennes tout en restant dans le cadre de la première approximation de Born, révélant toujours un désaccord, surtout dans la description du lobe de recul. Cependant, ce même modèle décrit mieux les résultats de [Lahmam-Bennani *et al*, 1984] obtenus avec une énergie incidente plus élevée et un transfert K plus petit.

En 1992, Zhang et ses collaborateurs [Zhang *et al*, 1992] ont montré que les sections efficaces mesurées dans [Bickert *et al*, 1991] peuvent être reproduites par le modèle 'DWBA' décrivant les états de l'électron par des ondes distordues qui incluent implicitement d'autres effets.

En 1997, de nouvelles mesures ont été faites en Australie par le groupe de Lohmann [Cavanagh *et al*, 1997], à une énergie incidente de 1,2 keV et différentes énergies d'éjectés variant entre 120 eV et 50 eV. Ces expériences s'accordent avec celles faites en 1999 par l'équipe d'Orsay [Taouil *et al*, 1999] à une énergie incidente de ~5,7 keV et à une énergie d'éjecté de 10 eV, pour confirmer la tendance générale de la structure de la section efficace triplement différentielle, à savoir que le lobe de recul est dominant en intensité par rapport au lobe binaire, contrairement au cas de l'ionisation en couche externe où le lobe binaire domine généralement. Cette intensité de recul accrue reflète une forte participation de l'ion dans la collision. Les résultats d'Orsay [Taouil *et al*, 1999] ont été comparés avec les modèles FBA, PWBA et DWBA. Ceux-ci s'avèrent complètement inadaptés pour décrire l'expérience sous ces conditions. Par contre, dans les conditions de l'équipe australienne, le modèle DWBA reproduit bien la forme des distributions angulaires expérimentales, et donne un rapport d'intensité recul sur binaire correct. La seule différence entre les résultats du groupe australien et ceux d'Orsay est que le transfert de quantité de mouvement dans ces derniers est 5 à 6 fois plus faible que pour le groupe de Lohmann. En d'autres termes, l'électron éjecté dans l'expérience d'Orsay n'emporte que très peu de quantité de mouvement, ce qui correspond à un régime où le modèle DWBA est moins performant pour décrire le processus d'ionisation [Whelan *et al*, 1993]. Ceci confirme aussi la conclusion tirée par [Avaldi *et al*, 1993] suite aux mesures faites sur le Xe(4d) qui ont montré une détérioration rapide de l'accord entre le

¹ Coulomb Wave Born Approximation

modèle DWBA et l'expérience lorsque le transfert de quantité de mouvement devient plus faible. A noter aussi que dans le modèle DWBA les interactions électrons - électrons d'ordre supérieur à 1 (collisions multiples) ne sont pas prises en compte. Or l'importance de ces interactions a été démontrée par plusieurs expériences (e,2e). Citons par exemple celles faites sur H et He à des faibles énergies d'éjection [Ehrhardt *et al*, 1986], ou encore celles concernant des processus d'ionisation et excitation simultanées de l'hélium [Marchalant *et al*]. Dans ce dernier travail, il a été mis en évidence l'effet déterminant des contributions du second ordre du développement de Born. Finalement, l'équipe d'Orsay [Taouil *et al*, 1999] a remarqué que l'ionisation de la couche interne (2p) de l'argon donne lieu à une émission Auger. L'interaction de cet électron Auger avec l'électron diffusé rapide, puis avec l'électron éjecté lent pourrait en effet expliquer l'asymétrie de la distribution angulaire autour de la direction du transfert de quantité de mouvement, $\pm \vec{K}$, observée expérimentalement.

D'autre part, plusieurs travaux ont montré que la présence d'un troisième électron non détecté, électron Auger, peut engendrer des effets post collisionnels 'PCI' avec l'électron éjecté [Berezhko *et al*, 1978] et [Sewell *et al*, 1984 a, b]. Ces effets peuvent effectivement affecter la distribution angulaire de la section efficace.

Le fait que l'ionisation de la couche interne (2p) de l'argon donne lieu à une émission Auger qui peut perturber les distributions angulaires d'ionisation directe (e,2e) est à la base de l'une des motivations de ce travail : réaliser de nouvelles expériences d'ionisation sur l'argon où l'accent sera mis sur l'effet Auger, afin de contribuer à élucider son importance.

5.2 Processus Auger

Les électrons Auger sont des électrons émis lors de la désexcitation d'un atome, dans notre cas l'atome d'argon. Ce phénomène a été découvert en 1923 par Lise Meitner (1878-1968) mais c'est Pierre Auger (1899-1993) qui s'est également intéressé au phénomène quelques années plus tard qui lui a donné son nom. Lorsqu'un atome est bombardé par des projectiles de forte énergie, un électron d'une couche profonde est éjecté et l'atome est dans un état excité. Il se désexcite par une transition électronique, un électron périphérique 'descend' et vient occuper la place laissée vide. Cette transition libère de l'énergie qui peut prendre deux formes possibles : l'émission d'un photon, c'est la fluorescence; ou l'éjection d'un électron périphérique, c'est l'électron Auger.

Le processus Auger peut alors être décrit par un mécanisme à deux étapes (figure 5.1) : la première étape consiste en une simple ionisation de la couche 2p de l'atome d'Ar qui pourra

être considérée comme un processus (e,2e). La deuxième étape consiste en un réarrangement électronique avec éjection d'un autre électron de la couche 3p.

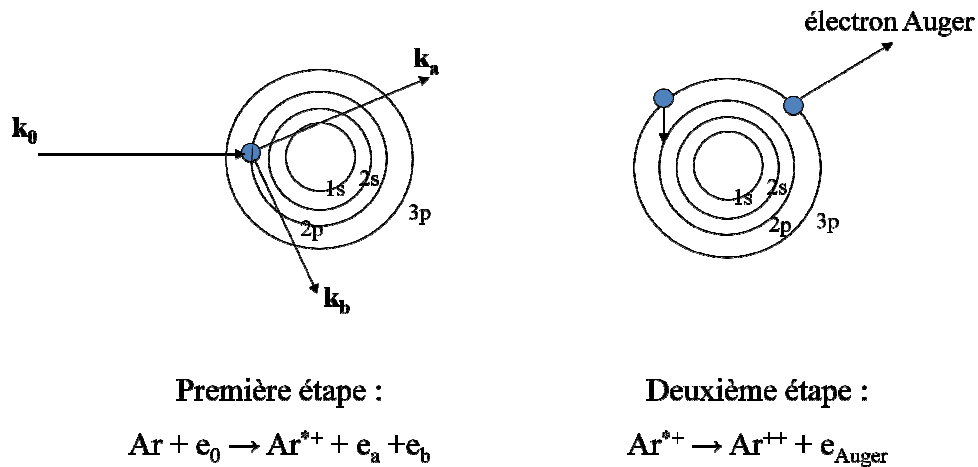


Figure 5.1 : Schéma d'un processus Auger dans le cas d'une cible d'Argon.

La distribution en énergie des raies Auger dans le cas de l'argon est donnée dans les tables de [Siegbahn *et al*, 1969]. Afin d'évaluer la contribution des électrons Auger dans la zone 197 à 208 eV où se trouve la quasi-totalité des transitions LMM Auger de l'argon faisant l'objet de notre étude, nous avons tracé le taux de comptage des électrons éjectés en fonction de l'énergie analysée par notre détecteur b ou c, en intégrant sur l'ensemble du domaine angulaire $\theta_{b,c}$ couvert par cet analyseur (figure 5.2).

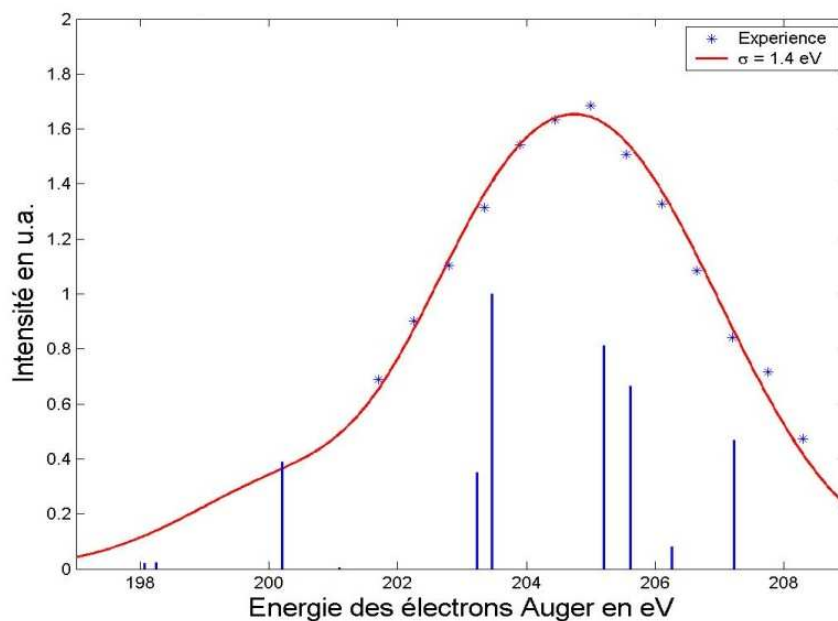


Figure 5.2 : Spectre d'émission des électrons Auger d'Ar, pour les transitions LMM.

Nous avons ensuite comparé cette distribution mesurée à la distribution des électrons Auger, représentée dans la figure 5.2 (courbe rouge) par la convolution de l'ensemble du spectre de raies Auger pures (traits bleus) donné par [Siegbahn *et al*, 1969] par notre fonction (gaussienne) de transmission énergétique de l'analyseur. L'accord entre nos mesures (étoiles) et cette convolution est tout à fait satisfaisant. D'après le spectre ci-dessus, le maximum d'émission des électrons Auger est à 205 eV : c'est l'énergie choisie dans la suite pour nos électrons éjectés afin d'être au maximum d'émission des électrons Auger.

5.3 Compétition des processus

Dans ce chapitre, nous décrivons nos mesures (e,2e) et, pour la première fois, des mesures (e,3e) représentant respectivement la simple (SI) et la double (DI) ionisation de la couche 2p d'Argon. Ces dernières mesures sont réalisées sous des conditions énergétiques permettant un transfert d'énergie important à la cible (presque la moitié de l'énergie incidente !), suffisant pour qu'il provoque soit une double ionisation directe en éjectant deux électrons de la couche 3p, soit une double ionisation indirecte en éjectant en premier lieu un électron de la couche 2p suivi, en deuxième lieu, d'une émission d'un électron Auger. Cela offre la possibilité d'étudier à plusieurs niveaux la compétition et/ou l'interférence entre ces deux processus de DI, directe et indirecte. La figure 5.3 schématise les différentes 'voies' de simple et de double ionisation de l'Ar conduisant au même état final ionisé.

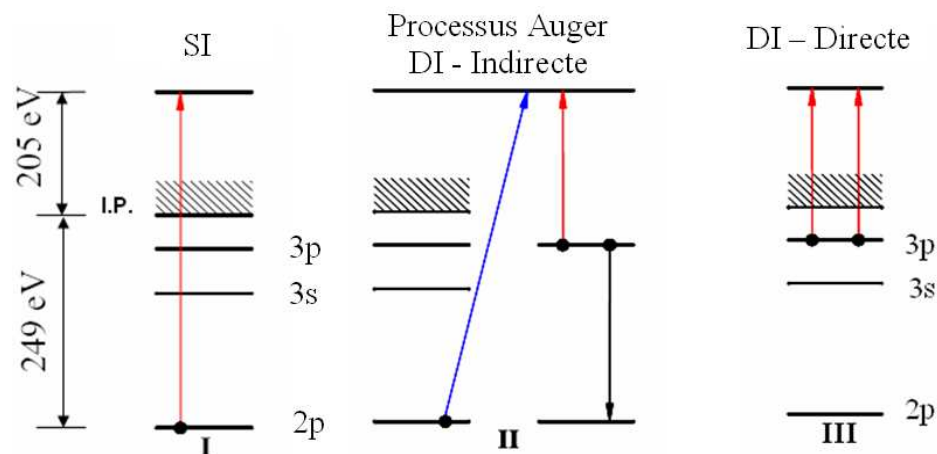


Figure 5.3 : Diagramme illustrant les différentes 'voies' conduisant au même état final ionisé. Les intervalles entre les niveaux énergétiques ne sont pas à l'échelle.

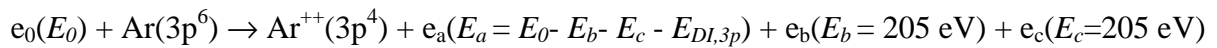
Dans les travaux précédents, les valeurs faibles des sections efficaces ont empêché l'étude de ces processus dans le cadre de la cinématique définie ci-dessus. Ceci est maintenant

rendu possible grâce à notre nouveau spectromètre (e,2e) - (e,3e) comprenant trois analyseurs toroïdaux décrits dans le chapitre II et qui a introduit une amélioration remarquable sur l'efficacité de détection.

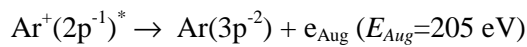
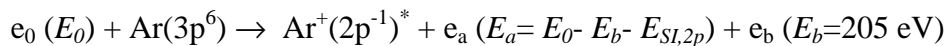
Dans tous les travaux précédents, les électrons diffusé, éjecté et Auger peuvent être, facilement distingués par leurs énergies cinétiques : les électrons les plus rapides et les plus lents correspondent respectivement aux diffusés et éjectés tandis que les électrons Auger sont caractérisés par leur énergie fixe. Nos expériences (e,2e) décrites dans ce travail se caractérisent par une cinématique où les électrons diffusés ont une énergie de 500 eV et sont détectés en coïncidence avec les électrons éjectés dont l'énergie correspond exactement à celle de l'électron Auger (205 eV). Dans ces conditions, les électrons éjectés et les 'Auger' ne peuvent plus être distingués, en d'autres termes nous ne pourrions pas séparer les expériences (e,2e) et les expériences (e,e'-Auger). Evidemment, l'étude complète de ces processus est la détection en coïncidence des trois électrons de l'état final : diffusé, éjecté et Auger. Les expériences (e,2e) sont alors complétées par une expérience (e,3e) avec les mêmes conditions cinématiques afin de contribuer à la compréhension du rôle des différents processus de double ionisation directe et indirecte.

Nous avons donc étudié la DI directe et indirecte (via Auger) de l'Ar suivant les réactions (1) et (2) respectivement :

(1) Double ionisation directe :



(2) Double ionisation indirecte :



où $E_{SI,2p} = 248 \text{ eV}$ est l'énergie de simple ionisation de la couche 2p tandis que celle de double ionisation de la couche 3p est $E_{DI,3p} = 43 \text{ eV}$. Nous rappelons que les indices 0 et a désignent respectivement l'électron incident et diffusé, les indices b et c désignent ceux éjectés après la collision, tandis que l'indice 'Aug' désigne l'électron Auger émis de l'atome cible lors de son réarrangement électronique. Les processus (1) et (2) illustrés schématiquement dans la figure 5.3 contribuent tous les deux à notre mesure d'intensité.

Enfin, et pour essayer d'être complet sur le contexte de ce travail, il faut signaler que des expériences similaires ont été rapportées par Doering *et al* [Doering *et al*, 1990] et par Catoire *et al* [Catoire *et al*, 2004]. Dans ces deux travaux, et contrairement au présent travail, deux

électrons sur trois de l'état final (éjectés et Auger) ont été détectés en coïncidence en ne tenant pas compte de l'électron diffusé, avec une énergie de 205 eV. Par ailleurs, Ford et al [Ford *et al*, 1995], ont mesuré la section efficace du processus Auger sur du Mg, les électrons éjectés et Auger ayant une énergie de 35 eV pour une énergie incidente de 3500 eV. Cette mesure a montré une forte dépendance de la section efficace en fonction de l'angle mutuel, ce qui indique une forte corrélation entre les deux électrons détectés. Enfin, signalons les expériences (e,2e) de [Bolognesi *et al*, 2008] sur l'ionisation du Mg (2p), qui ont montré l'importance du lobe de recul dans l'ionisation en couche interne.

5.4 Expériences (e,2e) - (e,3-1e)

5.4.1 Description

Dans ce type d'expériences, les SETD résultant de la détection en coïncidence des électrons diffusé et éjecté issus de la même collision des électrons incidents avec une cible d'Ar sont mesurées. Les expériences ont été réalisées successivement avec deux conditions cinématiques différentes. Dans les deux cas, l'énergie de l'électron diffusé est fixée à $E_a = 500$ eV, tandis que l'électron éjecté est observé à $E_b = 205$ eV ou 225 eV, ce qui permet respectivement d'inclure ou d'exclure l'électron Auger dans le signal mesuré. En effet (voir figure 5.2), la contribution des électrons Auger est présente à $E_b = 205$ eV mais elle ne l'est pas à 225 eV. Pour respecter, dans chacun des deux cas, le principe de la conservation de l'énergie avant et après la collision, l'énergie incidente est ajustée à $E_0 = 953$ eV et 973 eV, respectivement. Nous rappelons que l'électron éjecté est toujours détecté, grâce à la géométrie de notre double analyseur toroïdal, dans les gammes angulaires comprises entre 20° - 160° et 200° - 340° . L'angle de diffusion est géométriquement fixé à $\theta_a = \pm 6^\circ$ avec une acceptance angulaire de 3° . A chacun de ces deux angles les expériences de l'ionisation de l'Ar donnent lieu à une distribution angulaire formée de deux lobes, l'un dans la direction du transfert \vec{K} de quantité de mouvement (binaire), l'autre dans la direction opposée (recul). Par conséquence, la distribution SETD obtenue à l'angle de diffusion $+\theta_a$ forme l'image symétrique de celle obtenue à $-\theta_a$ par rapport à la direction du faisceau incident. Cette symétrie a été utilisée comme un test de vérification de notre procédure de mesure. A signaler aussi que chacune des deux expériences, à $E_b = 205$ eV ou 225 eV, a été répétée plusieurs fois pour s'assurer de la reproductibilité de nos résultats. Ceci fait, les résultats expérimentaux discutés ci-dessous représentent alors une moyenne statistique de toutes ces différentes expériences.

Une attention particulière a été apportée pour s’assurer que les résultats des deux expériences à $E_b = 205$ eV et 225 eV sont obtenus à la même échelle relative afin qu’on puisse les comparer directement. Pour cela, nous remarquons que, d’une expérience à l’autre, l’énergie de l’électron diffusé ne varie pas alors que l’énergie incidente varie très peu ($\delta E_0/E_0 \sim 2\%$), en raison de la variation de l’énergie de l’éjecté. Par conséquent, les sections efficaces doublement différentielles (sans coïncidences) de l’électron diffusé restent quasiment inchangées. Ce qui nous a permis d’utiliser la fréquence des évènements sur le détecteur ‘a’ pour normaliser les SETD des deux expériences entre elles. Cette procédure introduit une erreur inférieure à quelques pourcents dans notre comparaison.

5.4.2 Résultats et discussions

Les résultats des deux mesures (e,2e) réalisées à l’énergie 205 eV et 225 eV de l’électron éjecté sont présentés dans les figures 5.4 et 5.5, respectivement. Les sections efficaces relatives mesurées à 205 eV sont comparées aux prédictions théoriques des modèles BBK et DWBA décrivant la simple ionisation de la couche 2p de l’Argon. Nous rappelons que le premier modèle BBK (figure 5.4 (a)), décrit dans [Brauner *et al*, 1989], consiste à représenter chacune des particules dans l’état final par une onde coulombienne. La particule incidente est quant à elle décrite par une onde plane. Le deuxième modèle, DWBA (figure 5.4 (b)), développé par Bartschat *et al* [Bartschat *et al*, 1987], utilise des ondes distordues pour décrire les particules dans le continuum. L’onde distordue de l’électron incident est calculée pour un potentiel statique moyen de l’atome neutre. La prise en compte de cette onde distordue rend compte des effets de polarisation de la cible ainsi que des mécanismes de collision élastique de la particule incidente sur l’Ar.

Nous observons un dédoublement des deux pics binaire et recul dans nos mesures. Notons que le pic binaire s’étend de part et d’autre de l’angle 0° . Le minimum dans la direction du transfert, $+\vec{K}$, est attribué au caractère p de l’orbitale ionisée. Il est prévu par les deux théories, toutefois il est plus prononcé dans le cas de BBK. Le deuxième minimum, observé dans la direction $-\vec{K}$, est prévu par le modèle DWBA mais pas par BBK. On peut l’interpréter comme étant dû à une réflexion de l’électron éjecté dans le potentiel de l’ion résiduel, dont le résultat est de former une sorte d’image symétrique du premier minimum, dans la direction de $-\vec{K}$. Par ailleurs, le modèle DWBA prévoit un minimum important vers $\pm 90^\circ$, beaucoup moins présent dans le modèle BBK ou dans les résultats expérimentaux.

Globalement, la figure 5.4 montre un accord raisonnable entre l’expérience et la théorie, à l’exception de quelques différences concernant par exemple l’amplitude des deux extrema.

Dans le but d'essayer de comprendre l'origine de ces différences, les deux calculs théoriques ont été faits pour deux angles de diffusion 6° et 3° afin de simuler l'effet de notre acceptation angulaire expérimentale $\Delta\theta_a = 3^\circ$. Des changements mineurs sont observés dans les résultats théoriques obtenus à 3° et 6° , aussi bien en ce qui concerne l'amplitude des lobes que leur forme, ce qui exclut tout effet notable de la résolution angulaire sur nos résultats expérimentaux.

Cependant, nous pouvons expliquer les différences observées entre l'expérience et la théorie par le fait que notre bilan énergétique, réglé pour une expérience de simple ionisation de la couche 2p d'Ar, ne garantit pas que les deux électrons éjectés atteignant nos détecteurs ne sont issus que du processus de SI. En effet, ils peuvent également être issus d'un processus (e,3-1e) de DI directe de la couche 3p, où le troisième électron, non détecté, compense la différence d'énergie entre les deux processus. En outre, à l'énergie de 205 eV, nous pouvons aussi détecter simultanément des électrons Auger issus du réarrangement électronique après la SI de la couche 2p (voir paragraphe 5.2). Ces deux contributions, la DI directe de la couche 3p et le processus Auger, se superposent donc dans nos mesures au signal (e,2e) provenant de la simple ionisation de la couche interne 2p. En revanche, aucun des deux modèles théoriques, BBK et DWBA, ne prend en compte ces contributions, décrivant seulement la simple ionisation de Ar-2p.

En fait, la remarque ci-dessus s'applique aussi à la plupart des expériences (e,2e) ou (e, e-Auger) précédemment publiées [Lahmam-Bennani *et al*, 1984] ,[Stefani *et al*, 1986], [Zhang *et al*, 1992] et [Cavanagh *et al*, 1997]. Dans ces expériences, la superposition du signal (e,3-1e) de la DI directe avec le signal (e,2e) de la SI est inévitable. Evidemment, tout dépend de l'importance relative de l'une par rapport à l'autre. Par exemple, la contribution du signal (e,3-1e) de la DI n'affecte pas trop le signal (e,2e) de la SI dans le cas où l'expérience, (ex : [Bickert *et al*, 1991]), est réalisée dans les conditions du critère de Bethe ($\vec{k}_b = \vec{K}$) où la section efficace de la SI-2p est importante et l'interaction cible - projectile est largement dominée par l'interaction binaire électron-électron.

Nos conditions cinématiques sont loin du critère de Bethe, impliquant des processus d'interaction projectile - cible plus complexes, et par conséquent la contribution relative du signal (e,3-1e) peut devenir significative. En plus, n'oublions pas la contribution des électrons Auger dans nos mesures. Compte tenu de tout ce qui précède, il n'est donc pas trop étonnant que l'accord entre les théories et l'expérience ne soit que raisonnablement bon.

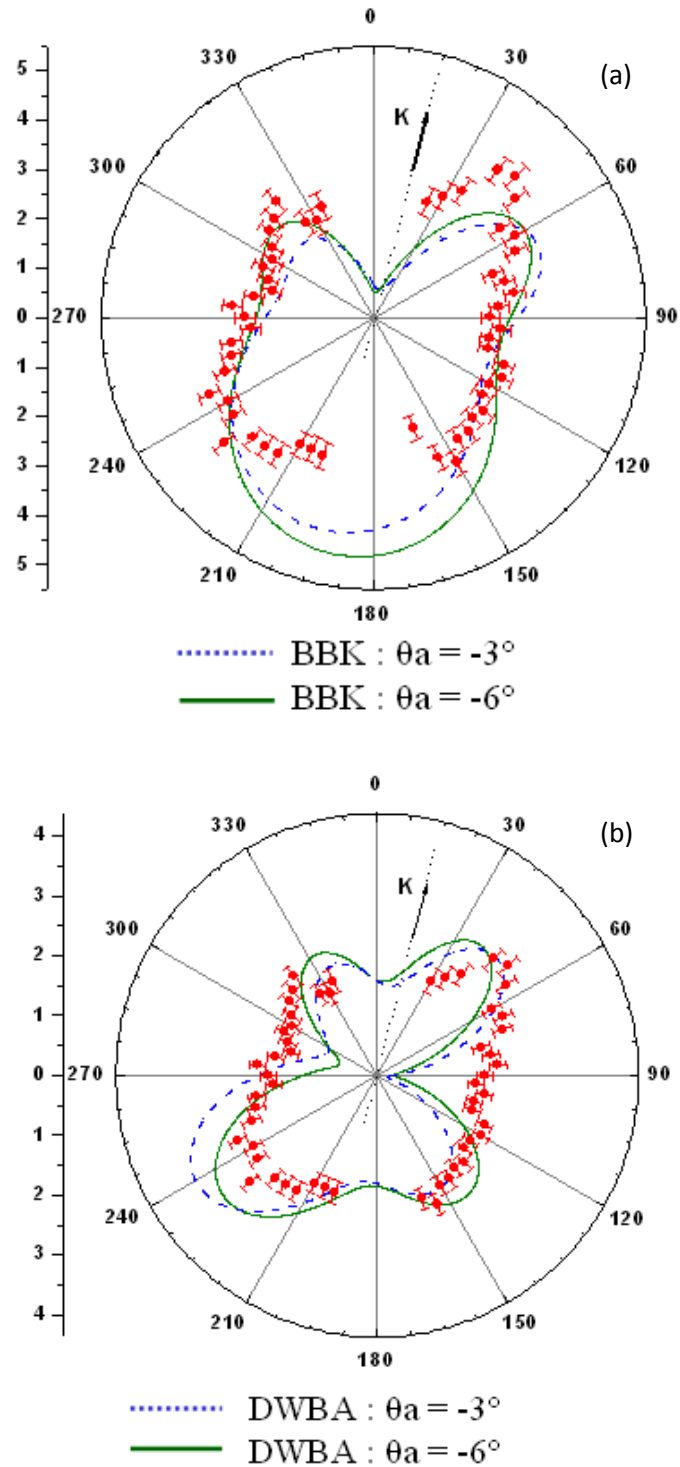


Figure 5.4 : Sections efficaces différentielles triples de Ar pour les paramètres suivants : $E_0 = 953$ eV, $E_a = 500$ eV et $E_b = 205$ eV. Les points représentent les résultats expérimentaux, avec la barre d'incertitude statistique. Les deux graphes représentent le même résultat comparé à deux théories différentes : (a) modèle BBK et (b) modèle DWBA calculés pour deux angles de diffusion différents -3° et -6° . Les sections efficaces mesurées sont normalisées à la théorie pour un meilleur accord visuel, elles sont données en unités atomiques ($\times 10^4$).

Pour mieux apprécier la contribution des électrons Auger dans nos mesures, nous avons réalisé les mesures à 225 eV d'électrons éjecté, présentées dans la figure 5.5. En effet, à 225 eV la contribution de l'effet Auger ne participe pas au signal mesuré puisque, selon le spectre de la figure 5.2, à 225 eV on est loin de la zone d'émission des électrons Auger de l'argon. Nos mesures sont comparées au modèle BBK. Comme dans le cas de 205 eV, les calculs sont faits pour deux angles de diffusion différents (-3° et -6°).

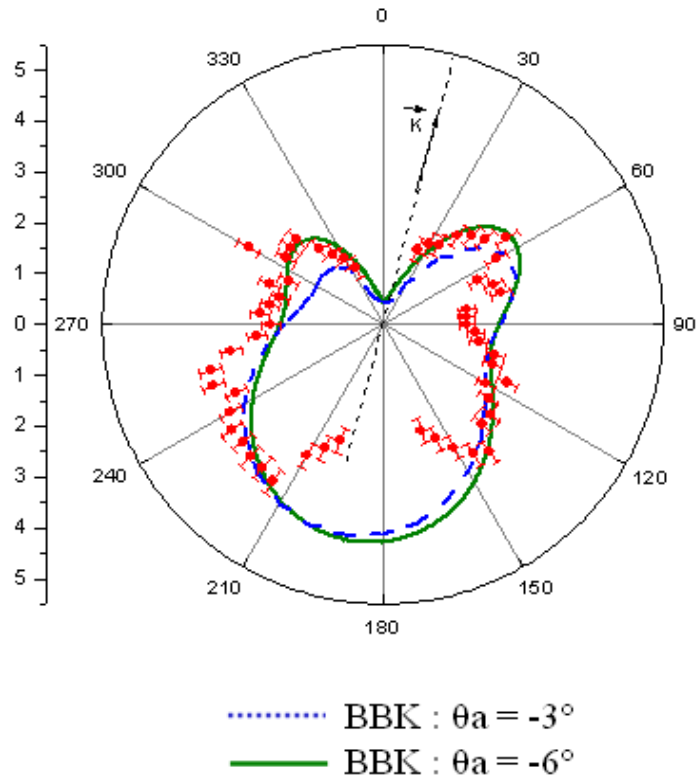


Figure 5.5 : Sections efficaces différentielles triples de Ar pour les paramètres suivants : $E_0 = 973$ eV, $E_a = 500$ eV et $E_b = 225$ eV. Les points représentent les résultats expérimentaux, avec la barre d'incertitude statistique. Les TDCS sont comparées au modèle BBK calculé pour deux angles de diffusion différents -3° et -6° . Les sections efficaces mesurées sont normalisées à la théorie pour un meilleur accord visuel, elles sont données en unités atomiques ($\times 10^4$).

Comme mentionné ci-dessus, les deux expériences à $E_b = 205$ eV et 225 eV sont obtenues à la même échelle relative. Par conséquent, les résultats expérimentaux dans les figures 5.4 et 5.5 sont donnés sur la même échelle relative, tandis que les résultats du modèle BBK à 225 eV sont multipliés par un facteur 0,65 afin d'obtenir un meilleur accord visuel avec l'expérience. La distribution angulaire obtenue par le modèle BBK change très peu en forme et en amplitude de $E_b = 205$ à 225 eV, ce qui indique que les sections efficaces issues de la simple ionisation de la couche 2p d'Ar restent quasi constantes dans cette gamme d'énergie

exploitée. Nos données montrent pourtant une variation importante tant en forme qu'en amplitude lors du changement de l'énergie E_b de l'électron l'éjecté de 205 à 225 eV. Cette constatation renseigne sur l'importance relative du seul processus qui ne contribue pas au signal mesuré à $E_b = 225$ eV, le processus Auger. Une soustraction des sections efficaces mesurées à $E_b = 205$ eV et $E_b = 225$ eV nous donne donc une représentation qualitative de la contribution des électrons Auger, même si nous savons pertinemment que les deux processus de double ionisation directe et indirecte (via Auger) mènent au même état final et peuvent donc interférer.

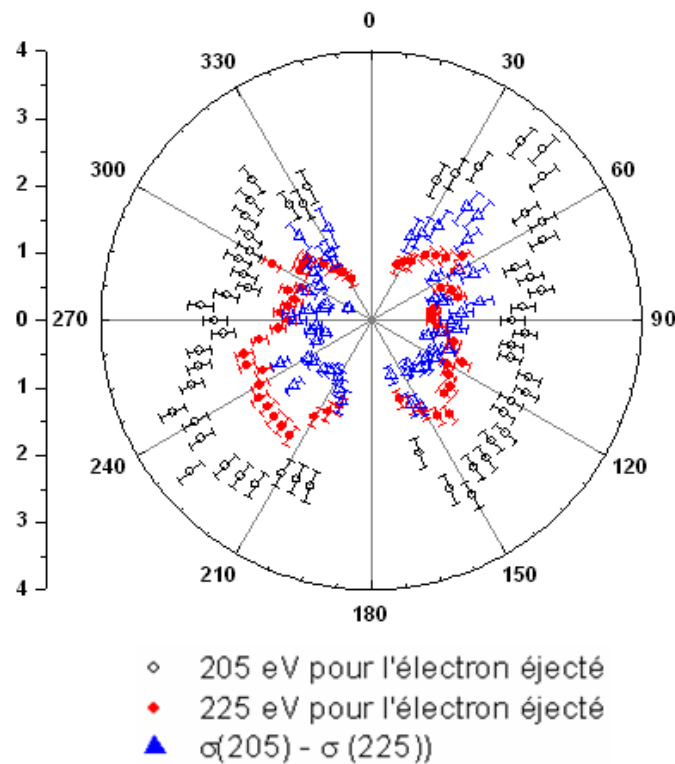


Figure 5.6 : comparaison entre les sections efficaces expérimentales mesurées à $E_b = 205$ eV (cercle plein) et $E_b = 225$ eV (cercle ouvert) obtenues à la même échelle relative, permettant une comparaison directe entre elles et avec leur différence (triangle ouvert)

La figure 5.6 montre une comparaison directe entre les deux mesures à 205 et 225 eV ainsi que leur différence. Deux conclusions peuvent être tirées :

(i) Tout d'abord, nous remarquons que l'amplitude de la 'différence des sections efficaces' $\sigma(205) - \sigma(225)$ paraît assez importante, comparable à celle de $\sigma(225)$. Cela signifie que la contribution Auger est loin d'être négligeable dans le cadre de nos conditions cinématiques. Ceci pourra expliquer, au moins en partie, les différences entre la théorie et l'expérience dans la figure 5.4.

(ii) La deuxième remarque est que la distribution des électrons Auger paraît non isotrope, contrairement à l'idée communément admise dans la littérature ([Sewell *et al*, 1984] et [Stefani *et al*, 1986]). En fait, nous remarquons que l'intensité de cette distribution est plus importante dans la région du binaire (vers $+\vec{K}$) que dans celle du recul (vers $-\vec{K}$). Cela est à mettre en opposition avec la grande intensité observée 'vers l'arrière' ($-\vec{K}$) dans les mesures à 225 eV où seulement les deux processus de la SI-2p et de la DI directe-3p contribuent, mais pas Auger. Cette anisotropie pourrait probablement être attribuée aux interférences entre les processus de la SI-2p et de la DI directe-3p.

Signalons à ce stade que la présence de l'électron Auger ne peut pas être la seule explication pour justifier les différences observées entre l'expérience et la théorie. En effet, les distributions du modèle BBK à $E_b = 225$ eV (figure 5.5) montrent qualitativement les mêmes écarts à l'expérience qu'à $E_b = 205$ eV (figure 5.4a), ce qui signifie que la contribution manquante dans la théorie à 225 eV, la DI indirecte-3p, est également importante.

Si nous voulons conclure à ce propos, nous pouvons dire que les résultats présentés ci-dessus, obtenus dans des conditions cinématiques particulières, nous transmettent deux messages. Le premier est que l'intensité de la contribution des électrons Auger n'est pas isotrope, probablement en raison d'interférences entre le processus de DI directe de la couche 3p et de la DI indirecte via une émission Auger. Deuxièmement, une description théorique complète de ces résultats se doit de tenir compte des trois processus permis, c'est-à-dire la DI directe, la DI indirecte et la SI-2p. Un tel support théorique, plus sophistiqué, est nécessaire afin d'éclaircir l'origine des différences expérience - théorie.

5.5 Expérience (e,3e)

Dans le but d'atteindre une compréhension plus fine des différents processus déjà étudiés, nous avons réalisé une expérience (e,3e) dans laquelle nous détectons les trois électrons présents dans l'état final. (Voir paragraphe 2.6.b).

5.5.1 Description

Dans cette expérience, les sections efficaces quintuplement différentielles (SEQD ou FDCS en anglais) sont mesurées en détectant l'électron diffusé en coïncidence avec la paire d'électrons éjectés de la cible d'Argon. L'énergie incidente et diffusée sont fixées respectivement à $E_0=953$ eV et $E_a=500$ eV. Les deux électrons éjectés, provenant soit d'un processus de DI directe soit d'une DI indirecte (cf. paragraphe 5.3) ont alors la même énergie que les électrons Auger, soit $E_b = E_c = E_{Aug} = 205$ eV. Il s'en suit que, même si nous pouvons

encore continuer à identifier les électrons diffusés comme étant les plus rapides, les deux autres électrons (éjecté et/ou Auger) sont totalement indiscernables.

A cause de la détection en triple coïncidence, les expériences de double ionisation (e,3e) sont bien connues par leur longue durée de mesure. Cette difficulté est d'autant plus importante lorsqu'on ionise une couche interne, car les sections efficaces sont plus faibles que pour l'ionisation en couche externe. D'où la nécessité d'une longue durée d'accumulation pour atteindre une statistique raisonnable : un total de 30 jours non-stop pour le résultat présenté ici, pour un nombre de coïncidences totales de 500 000 environ, ce qui correspond à une fréquence de 0,2 coïncidence par seconde. Dans l'ensemble de ces coïncidences, seules les coïncidences vraies sont d'un intérêt physique. Or ces coïncidences vraies représentent 0,5 % de l'ensemble des coïncidences totales soit un taux de 10^{-3} coïncidences vraies par seconde. Ceci laisse présager d'une statistique faible rendant l'exploitation délicate. Nous notons qu'une amélioration de la statistique, par exemple d'un facteur 2, impliquerait une accumulation des données sur une durée au moins 4 fois plus longue. Nous rappelons aussi que dans le cas d'une accumulation (e,3e), l'incertitude statistique relative ou précision dépend d'un facteur proportionnel au courant i , voir chapitre 2, paragraphe 2.6.b. Ceci conduit à une valeur spécifique du courant, i_{opt} , qui minimise l'incertitude relative pour des conditions expérimentales données (figure 2.15). C'est l'une des conséquences de la présence du bruit de fond uniforme dû aux trois électrons non corrélés dans l'état final (voir le spectre de temps de double ionisation, figure 2.13). Nos expériences ont bien sûr été effectuées à ce courant optimum (environ 3 nA). Il est inutile d'espérer améliorer la statistique en augmentant la densité de gaz ou l'intensité du faisceau d'électrons incidents car cela ne peut conduire qu'à une dégradation du rapport signal/bruit et à une détérioration de la 'qualité' de l'expérience définie par l'incertitude statistique relative.

5.5.2 Résultats et discussion

Les mesures sont effectuées avec des électrons b et c de même énergie. Cette caractéristique doit se retrouver sur les sections efficaces par une symétrie en échangeant le rôle des électrons b et c détectés de part et d'autre de l'électron incident. Cette remarque nous permet de soumettre notre résultat à un double test. Le premier consiste à obtenir une distribution angulaire des sections efficaces mesurée à $+\theta_a$ identique à celle mesurée à $-\theta_a$ tout en échangeant le rôle des électrons b et c, en d'autres termes, $\sigma_{e3e}(+\theta_a, \theta_b, \theta_c) = \sigma_{e3e}(-\theta_a, -\theta_c, -\theta_b)$. Le deuxième test consiste à obtenir une symétrie axiale par rapport à la direction incidente de la somme des deux distributions mesurée à $+\theta_a$ et $-\theta_a$ [Catoire, 2006]. Malgré la

faible statistique, nos données remplissent ces deux exigences de symétrie (voir figure 5.7 [Catoire *et al*, 2007]). Enfin, et comme conséquence du premier test de symétrie, une amélioration de la statistique du résultat final a été obtenue en additionnant les deux séries de mesures correspondant à $+\theta_a$ et à $-\theta_a$.

La figure 5.8 est une représentation en 2D de la distribution angulaire des sections efficaces de notre expérience (e,3e). Dans la suite, nous commentons quelques observations expérimentales que nous avons pu déduire de ce résultat¹.

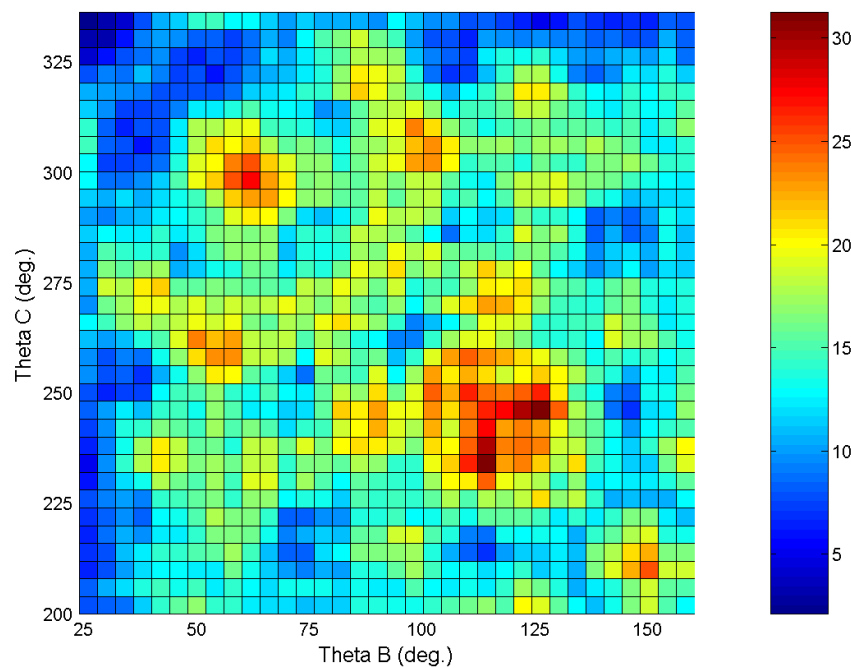


Figure 5.7 : Exemple extrait de [Catoire *et al*, 2007] montrant la symétrie axiale par rapport à la direction incidente de la somme des deux distributions mesurée à $+\theta_a$ et $-\theta_a$. Dans le graphe, sont montrées des distributions angulaires d'une expérience (e,3e) pour des électrons éjectés de 205 eV, une énergie incidente de 953 eV et un angle de diffusion de -6° . La barre de couleur indique le nombre d'évènements enregistrés par pixel.

- (i) Tout d'abord, nous notons une structure complexe et riche présentant plusieurs maxima (qu'on désigne par 'pics' dans la suite, par souci de concision) et minima d'intensité. Nous tenons à souligner que, malgré la faible statistique, nous croyons que ces structures sont suffisamment significatives, pour deux raisons. La première est de *nature statistique* : en effet, chaque pic n'est pas constitué d'un seul pixel qui contient 35 évènements mais de plusieurs pixels voisins qui l'entourent et qui

¹ Il est à signaler que la figure 5.7 est directement extraite de l'article de [Catoire *et al*, 2007], dans lequel une convention différente a été adoptée pour les angles. Par rapport à la présente figure 5.8, les angles θ_b et θ_c doivent être inter-changés.

contiennent entre 18 et 23 évènements environ. C'est l'intégration de tous ces pixels qui définit vraiment la présence d'un pic. La deuxième raison est de *nature physique* : l'intensité présente sur le diagramme en dehors des pics **n'est pas un bruit de fond**, mais un vrai signal (e,3e) de triple coïncidence formant une contribution plus ou moins uniforme. Le vrai bruit, dû aux coïncidences fortuites, a été soustrait ainsi qu'expliqué au chapitre 2, paragraphe 2.6.b.

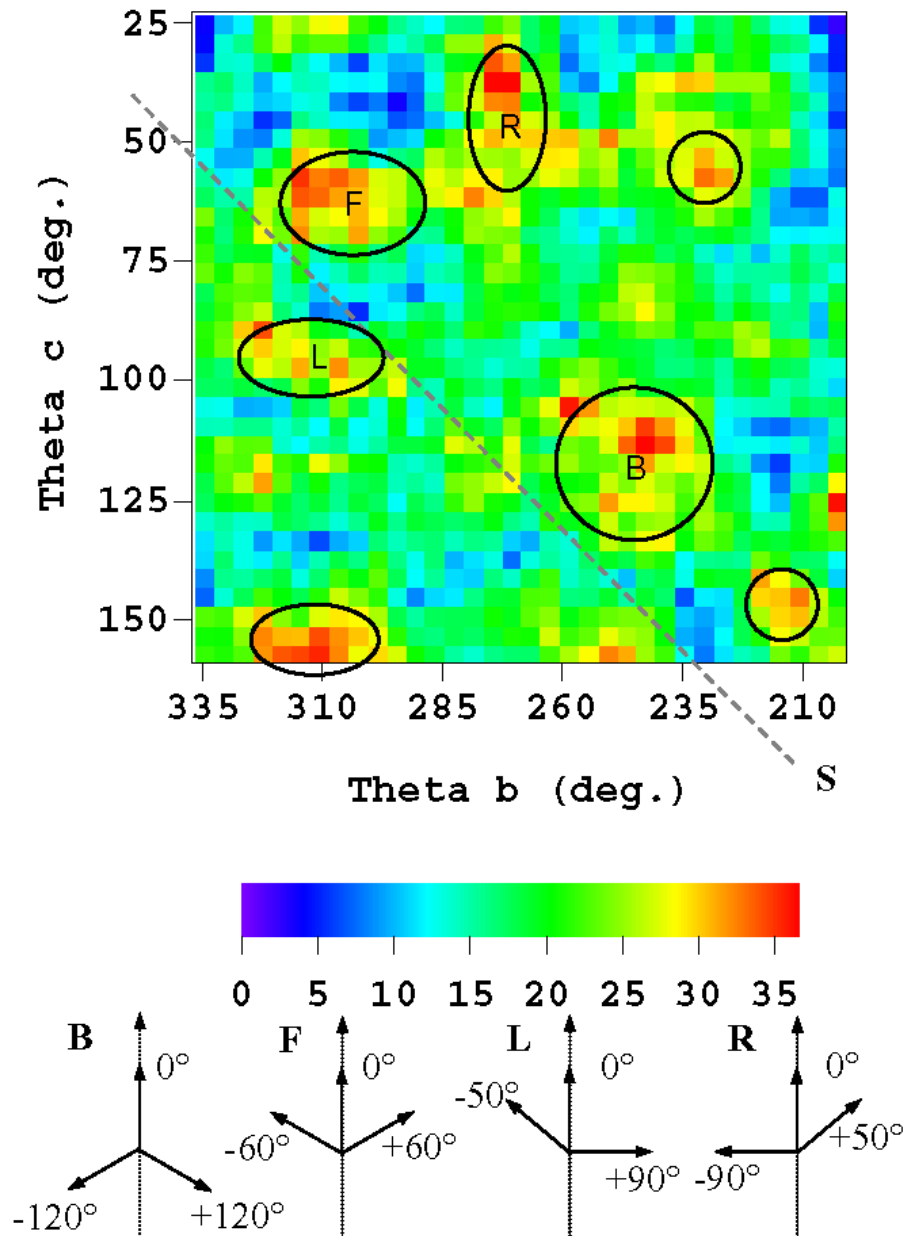


Figure 5.8 : Distribution angulaire de la section efficace quintuplement différentielle relative d'une cible d'Ar en fonction des angles θ_b et θ_c . Les deux électrons éjectés ont la même énergie de 205 eV, l'énergie du diffusé est fixée à 500 eV et l'angle de diffusion est -6° . La barre de couleur indique le nombre d'évènements enregistrés par pixel. Les diagrammes de la partie inférieure illustrent la direction d'émission des trois électrons respectivement pour les maxima B, F, L et R (voir texte).

(ii) Les pics les plus notables dans la figure 5.8 sont notés par B, F, R et L dans le but de simplifier la discussion dans la suite. Ils correspondent aux diagrammes d'émission schématisés en bas de la figure.

- L'intensité du pic B (Backward, par rapport à la direction incidente) est attribuée à l'émission vers l'arrière des deux électrons éjectés de la cible, sous des angles symétriques de $\pm 120^\circ$ par rapport au troisième électron qui est diffusé à $\theta_a = -6^\circ$ ce qui coïncide pratiquement avec la direction 0° . Une telle symétrie tend à minimiser la répulsion coulombienne entre les trois électrons de l'état final (dont les vitesses sont similaires : $v_a \sim 1,5v_{b,c}$).
- De la même manière, les électrons b et c peuvent aussi être émis vers l'avant (pic F, Forward), dans un arrangement symétrique où $\theta_{b,c} = \pm \sim 60^\circ$.

Il est remarquable de constater que les positions angulaires de ces deux pics B et F coïncident étroitement avec les quatre structures observées dans la figure 5.4, à la fois dans les expériences, et dans le modèle théorique DWBA : le pic B coïncide avec la double structure du lobe de recul, observée à environ $\pm(120^\circ-130^\circ)$; le pic F coïncide avec la double structure du lobe binaire à environ $\pm(50^\circ-60^\circ)$. Or le modèle DWBA ne décrit que la simple ionisation 2p directe et ne tient pas compte du tout du processus Auger. Il est donc raisonnable d'associer les pics B et F essentiellement à un processus de double ionisation indirecte en deux étapes (two-step), où une SI-2p se produit en premier lieu. Un électron Auger est ensuite émis de manière quasi-isotrope, suite au réarrangement électronique de la cible, un peu à la manière de la relaxation de la cible qui donne lieu au mécanisme shake-off¹ (SO).

(iii) Les électrons éjectés b et c peuvent aussi être émis dans une configuration conduisant aux pics L (Left) et R (Right) à $\sim (-50^\circ, +90^\circ)$ ou $\sim (-90^\circ, +50^\circ)$, respectivement. Cette configuration est remarquable par le fait qu'un des électrons est émis à angle droit par rapport à l'électron diffusé, évoquant une collision binaire électron-électron, ce qui conduit à l'attribution de ces deux pics au processus de double ionisation directe de la couche 3p via le mécanisme à deux étapes 2 (two-step 2, TS2²) comme suit : un électron incident d'énergie 953 eV est d'abord diffusé sous petit angle après une collision binaire

¹ Shake-Off est un mécanisme du premier ordre qui consiste en une interaction unique entre le projectile et un électron de la cible conduisant à une première ionisation, tandis que la deuxième ionisation se fait par une relaxation de la cible [Tweed, 1992 ; Duguet *et al*, 1992].

² TS2 est un mécanisme du deuxième ordre, qui consiste en deux interactions successives du projectile avec deux électrons de la cible, conduisant à une ionisation en deux étapes (two-step 2 interactions) [Tweed, 1992 ; Duguet *et al*, 1992].

avec un électron de la couche externe 3p. Un électron sera alors éjecté de la cible en faisant un angle droit par rapport à l'électron diffusé (d'où l'angle $\pm 90^\circ$) avec une énergie 205 eV. L'électron diffusé (avec une énergie restante de $953-205-15,6 = 732,4$ eV) rentre à nouveau en collision avec un second électron de la couche 3p et l'éjecte (avec l'énergie 205 eV) dans un processus (e,2e), en étant lui même rediffusé sous l'angle 6° avec une énergie de 500 eV. Cette collision de type (e,2e) conduit à un pic binaire à $\pm 50^\circ$. C'est le mécanisme TS2 bien connu.

- (iv) Il est bien établi dans la littérature [Berakdar *et al*, 2003] que si le processus de double ionisation résulte d'une interaction unique du projectile avec la cible, (comme dans le cas du mécanisme du premier ordre 'SO'), alors la distribution de la section efficace doit présenter un axe de symétrie (noté S dans la figure 5.7) dont l'existence correspond à l'émission symétrique des deux électrons éjectés par rapport à la direction du transfert de moment, $\theta_b - \theta_K = -(\theta_c - \theta_K)$. Or nous remarquons clairement que cette symétrie est violée dans notre résultat, signature de la présence des processus d'ordre supérieur, tel que le mécanisme TS2, qui doivent jouer un rôle ainsi que proposé dans (iii).
- (v) Enfin, nous remarquons que la distribution de l'intensité dans la figure 5.7 est assez complexe puisqu'elle présente d'autres pics, particulièrement celui vers $\sim (310^\circ, 160^\circ)$, ou encore l'autre plus faible à $\sim (215^\circ, 140^\circ)$. Nous n'avons pas d'interprétation simple à ces pics en termes de mécanismes connus de double ionisation. Cependant, ils pourraient être liés à l'interférence des différents processus d'ionisation conduisant au même état final, donnant lieu à de 'nouveaux' extrema non prévus par de simples considérations cinématiques.

Du point de vue théorique, il n'existe pas, à notre connaissance, de modèle théorique décrivant la double ionisation dans nos conditions, modèle qui pourrait nous aider à mieux comprendre ces données. Cependant, il existe une approche théorique utilisée par [Catoire, 2006] qui est en fait un développement du modèle approximatif développé par l'équipe de Metz ([Elazzouzi *et al*, 2005 et 2006]). Ce modèle consiste à écrire la fonction d'onde définissant l'état final sous forme du produit de six fonctions d'onde coulombiennes (d'où l'appellation 6C) qui décrivent l'électron diffusé et les deux électrons éjectés en tenant compte de leur interaction avec le noyau, ainsi que de toutes les interactions mutuelles entre les trois électrons dans la voie finale. Les quatre particules dans la voie finale (l'électron diffusé, les deux électrons éjectés et l'ion résiduel) sont traitées sur un pied d'égalité, c'est-à-dire que ce modèle va au-delà de la deuxième approximation de Born. Durant son travail de

thèse, Saïd ElAzzouzi a développé ce modèle en premier lieu pour calculer la section efficace quadruplement différentielle pour la double ionisation d'une cible atomique d'argon par impact électronique basé essentiellement sur le mécanisme Shake-Off. Ce développement s'avère incapable d'expliquer toutes les données expérimentales. La prise en compte théorique du processus Auger (introduit pour la première fois par Fabrice Catoire [Catoire, 2006]) et des mécanismes à deux étapes TS1¹ et TS2 sera sûrement nécessaire pour la compréhension des résultats expérimentaux, mais ce développement nécessite un temps de calcul considérable, et l'exploitation des résultats reste impossible actuellement.

5.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les résultats des deux expériences (e,2e) et (e,3e) de simple et de double ionisation d'une cible d'argon sous des conditions cinématiques jusqu'à alors inexplorées, caractérisées par un large transfert d'énergie à la cible, et où les deux électrons éjectés ont la même énergie cinétique. L'expérience (e,3e) implique la détection en coïncidence des électrons diffusés et éjectés y compris les électrons Auger. Ce sont des expériences très délicates en raison des très faibles sections efficaces, mais dont la réalisation a été rendue possible grâce à la sensibilité accrue de notre spectromètre.

Un accord raisonnable est obtenu en comparant nos résultats (e,2e) avec ceux des deux modèles théoriques BBK et DWBA qui tiennent compte seulement de la simple ionisation de la couche 2p. Le modèle BBK ne reproduit pas le dédoublement des deux lobes binaire et recul tandis que le modèle DWBA prévoit un minimum important à $\pm 90^\circ$, non présent dans les résultats expérimentaux. Les différences entre l'expérience et les théories sont attribuées aux différents processus de double ionisation non inclus dans les deux modèles, soient la DI directe de la couche 3p et la DI indirecte via l'émission d'un électron Auger.

Quant au résultat (e,3e), la distribution de l'intensité mesurée révèle une structure complexe et riche présentant plusieurs extrema, en partie résultant des interactions qui tendent à minimiser la répulsion coulombienne entre les trois électrons de l'état final. Certains des pics observés sont directement liés à ceux observés dans les résultats de l'expérience (e,2e). Ils peuvent être attribué aux différents mécanismes d'ionisation (Shake-Off, Two-step 2, émission d'électron Auger...).

¹ TS1 est un mécanisme de premier ordre, qui consiste en une interaction unique du projectile avec la cible, conduisant à une première ionisation ; l'électron atomique ainsi libéré provoque une deuxième ionisation par collision avec un autre électron de la cible [Tweed, 1992 ; Duguet *et al*, 1992].

5.7 Bibliographie

- Avaldi L, Camilloni R, Multari R, Stefani G, Zhang X, Walters H R J and Whelan C T, Phys. Rev. A, **48**, 1195 (1993)
- Bartschat K and Burke P G, J. Phys. B, **20**, 3191 (1987)
- Berakdar J, Lahmam-Bennani A and Dal Cappello C, Physics Reports, **374**, 91 (2003)
- Berezhko E G, Kabachnik N M and Sizov V V, J. Phys. B, **11**, 1819 (1978)
- Bickert P, Hink W, Dal Cappello C and Lahmam-Bennani A, J. Phys. B, **24**, 4603 (1991)
- Bolognesi P, Bohachov H, Borovik V, Veronesi S, Flammini R, Fainelli E, Borovik A, Martinez J, Whelan C T, Walters H R J, Kheifets A and Avaldi L, J. Phys. B, **41**, 015201 (2008)
- Brauner M, Briggs J S and Klar H J. Phys. B, **22**, 2265 (1989)
- Brothers M J and Bonham R A, J. Phys. B, **19**, 3801 (1986)
- Catoire F, Dal Cappello C, Lahmam-Bennani A and Duguet A, Electron and Photon Impact Ionization and Related Topics, ed. B. Piraux, IOP Pub. Lim., Bristol, **183**, 53-62 (2004)
- Catoire F, Lahmam-Bennani A and Duguet A, Physica Scripta, **T110**, 228-232 (2004)
- Catoire F, Staicu Casagrande E M, Lahmam-Bennani A, Duguet A, Naja A, Ren X G, Lohmann B and Avaldi L, Rev. Sci. Instrum., **78**, 013108 (2007)
- Catoire F, Thèse de Doctorat, Université Paris Sud XI, (2006), en ligne à l'adresse : <http://tel.archives-ouvertes.fr/docs/00/10/79/69/PDF/theseccatoire.pdf>
- Cavanagh S and Lohmann B, J. Phys. B, **30**, L231 (1997)
- Doering J P, Coplan M A, Cooper J W and Moore J H, Phys. Rev. A, **41**, 535 (1990)
- Duguet A and Lahmam-Bennani A, Z. Phys. D, **23**, 383 (1992)
- Ehrhardt H, Jung K, Knoth G and Schlemmer P, Z. Phys. D, **1**, 3 (1986)
- Elazzouzi S, Catoire F, Dal Cappello C, Lahmam-Bennani A and Charpentier I, J. Phys. B, **39**, 4961 (2006)
- Elazzouzi S, Dal Cappello C, Lahmam-Bennani A and Catoire F, J. Phys. B, **38**, 1391 (2005)
- Fang Y and Bartschat K, J. Phys. B, **34**, L19 (2001)
- Ford M J, Doering J P, Coplan M A, Cooper J W and Moore J H, Phys. Rev. A, **51**, 418 (1995)
- Grum-Grzhimailo A N, J. Phys. B, **18**, L695 (1985)
- Klar H, Franz A and Tenhagen H, Z. Phys. D, **1**, 373 (1986)
- Lahmam-Bennani A, Wellenstein H F, Duguet A and Daoud A, Phys Rev A, **30**, 1511 (1984)
- Marchalant P J, Whelan C T and Walters H R J, Coincidence Studies of Electron and Photon Impact Ionisation, eds. Marchalant P J and Whelan C T (New York : Plenum) p.21
- Sewell E C and Crowe A, J. Phys. B, **17**, L547 (1984)
- Siegbahn K, Nordling C, Johansson G, Hedman J, Hedén P F, Hambrin K, Gelius U, Bergmark T, Werme L O, Manne R and Baer Y, ESCA applied to free molecules, North-Holland publishing company (1969)
- Stefani G, Avaldi L, Lahmam-Bennani A and Duguet A, J. Phys. B, **19**, 3787 (1986)
- Taouil I, Duguet A, Lahmam-Bennani A, Lohmann B, Rasch J, Whelan C T and Walters H R J, J. Phys. B, **32**, L5 (1999)
- Tweed R J, Z. Phys. D, **23**, 309 (1992)
- Whelan C T, Walters H R J and Zhang X, (e,2e) and Related Processes, Kluwer Academic, Dordrecht (1993), p.1
- Zhang X, Whelan C T, Walters H J R, Allan R J, Bickert P, Hink W and Schönberger S, J. Phys. B, **25**, 4325 (1992)

Conclusion générale

Nous avons présenté dans ce mémoire une série de résultats concernant la simple et la double ionisation par impact électronique de cibles plus ou moins complexes, atomiques et moléculaires. Ces résultats ont été obtenus dans des expériences ‘complètes’ (e,2e) ou (e,3e), sous des conditions cinématiques inexplorées, caractérisées par un grand transfert de moment à l’ion résiduel qui joue ainsi un rôle important dans l’intensité de recul.

Nous avons commencé ce travail par l’étude de la simple ionisation de la molécule H₂. Dans le but de valider notre procédure expérimentale, nous avons effectué un travail similaire pour l’atome He : les résultats sont en excellent accord avec ceux du modèle référence CCC. Les résultats de H₂ sont comparés à deux modèles théoriques, les plus élaborés dans le domaine. Un accord raisonnable est observé entre l’expérience et la théorie, surtout par rapport à la distribution du lobe binaire. Le désaccord dans la comparaison concerne, d’une part, la position des lobes binaires attribuée à des effets de second ordre, et d’autre part, la faiblesse de l’intensité de recul prévue par les calculs par rapport à celle expérimentale, ce qui appelle à un développement pour une meilleure modélisation de l’interaction avec le noyau. Des *effets moléculaires* ont été mis en évidence dans une comparaison directe entre les résultats expérimentaux de H₂ et ceux obtenus sur He dans les mêmes conditions expérimentales. On observe une diminution ou une augmentation, dans le cas de la molécule, de l’intensité du pic de recul par rapport à celle du binaire, suivant l’énergie de l’électron éjecté. Ce comportement a été interprété comme étant le résultat d’effets d’interférence (type fentes d’Young) dues à la diffusion de l’onde éjectée par les deux noyaux de la molécule. Nos mesures confirment la présence de ces interférences et apportent un éclairage nouveau en montrant pour la première fois leur caractère constructif (augmentation du recul) ou destructif (diminution du recul) suivant l’énergie et donc la longueur d’onde de l’onde éjectée.

Nous avons ensuite présenté des résultats d’expériences (e,2e) sur des cibles plus complexes, le néon et le diazote, ionisées en couche externe ou interne. Les mesures sur le Ne sont réalisées dans deux laboratoires différents et sont comparées à cinq modèles théoriques, ce qui a permis de montrer l’importance, dans ces conditions

cinématiques, de certains effets comme les interactions électroniques post-collisionnelles ou l'interaction avec le noyau.

Les résultats sur la molécule N_2 sont comparés aux prédictions de deux modèles théoriques représentant l'état de l'art actuel pour décrire l'ionisation moléculaire, le modèle FBA-TCC (First Born Approximation - Two Centre Continuum) et le modèle M3DW-OAMO (Molecular Three body Distorted Wave approximation – Orientation Averaged Molecular Orbital). Un accord raisonnable est observé entre expérience et théorie, vue la complexité du processus d'ionisation des molécules, mais il se détériore fortement pour l'orbitale interne $N_2(2\sigma_g)$. Le désaccord sérieux observé entre la faible intensité de recul prévue par les calculs par rapport à celle expérimentale a montré la nécessité d'améliorer la description de l'ionisation moléculaire par l'utilisation de meilleures fonctions d'onde multicentriques et une meilleure prise en compte de la diffusion par les noyaux, mais il a aussi montré la faiblesse de la méthode OAMO utilisée pour moyenner sur les diverses orientations moléculaires.

Enfin, nous avons présenté les résultats de deux expériences (e,2e) et (e,3e) de simple et de double ionisation d'une cible d'argon, dans des conditions où les deux processus peuvent entrer en compétition. Un accord raisonnable est obtenu en comparant nos résultats (e,2e) avec ceux des deux modèles théoriques BBK et DWBA qui ne tiennent compte que de la simple ionisation de la couche 2p. Les différences entre l'expérience et les prédictions théoriques sont attribuées aux différents processus de double ionisation non inclus dans les deux modèles, soient la DI directe de la couche 3p et la DI indirecte via l'émission d'un électron Auger. Dans l'expérience (e,3e), la distribution de l'intensité mesurée révèle une structure complexe et riche présentant plusieurs extrema, en partie résultant des interactions qui tendent à minimiser la répulsion coulombienne entre les trois électrons de l'état final. Certains des pics observés sont directement liés à ceux observés dans les résultats de l'expérience (e,2e). Ils peuvent être attribués aux différents mécanismes d'ionisation (Shake-Off, Two-step 2, émission d'électron Auger...).

Ces études sur la SI (e,2e) de cibles moléculaires sont en cours d'extension à d'autres molécules plus ou moins complexes. Des résultats préliminaires très encourageants sont déjà obtenus, et en cours d'analyse, concernant la simple ionisation des 'molécules à effet de serre' CO_2 et CH_4 .

Les résultats spectaculaires obtenus en (e,3e) sur Ar incitent à étendre l'étude dans deux directions :

- la DI d'atomes simples, avec pour objectif l'étude de la corrélation structurelle dans la cible. Sous les conditions du critère de Bethe, les distributions angulaires des électrons éjectés permettent d'obtenir des informations directes sur une quantité fondamentale : la densité bi-électronique. Les seuls résultats existants à ce jour sont ceux obtenus dans le groupe sur He.

- la DI de petites molécules : le domaine est pratiquement vierge ! La comparaison des résultats avec ceux obtenus sur des atomes 'proches' devraient, entre autres, mettre en évidence des effets *purement moléculaires*.